



TITLE:

放射性廃棄物の浅層陸地処分のための基礎的研究: 浅層地中での放射性核種移動に関する検討(Dissertation_全文)

AUTHOR(S):

馬原, 保典

CITATION:

馬原, 保典. 放射性廃棄物の浅層陸地処分のための基礎的研究: 浅層地中での放射性核種移動に関する検討. 京都大学, 1988, 工学博士

ISSUE DATE:

1988-05-23

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.r6578>

RIGHT:

放射性廃棄物の浅層陸地処分のための 基礎的研究

—浅層地中での放射性核種移動に関する検討—

昭和63年1月

馬原保典

放射性廃棄物の浅層陸地処分のための 基礎的研究

—浅層地中での放射性核種移動に関する検討—

昭和63年1月

馬原保典

放射性廃棄物の浅層陸地処分のための 基礎的研究

—浅層地中での放射性核種移動に関する検討—

昭和63年1月

馬 原 保 典

目 次

第1章 緒論	1
1.1 はじめに	1
1.2 放射性廃棄物の陸地処分	2
1.3 我国における放射性廃棄物処分	9
1.3.1 我国における放射性廃棄物処分の現状	9
1.3.2 我国における放射性廃棄物の陸地処分のシナリオと計画	9
1.4 陸地処分場立地選定条件	14
1.5 本研究の目的	14
参考文献	17
第2章 通気層における放射性核種の移動に関する研究	20
2.1 概説	20
2.2 通気層における放射性核種の移動に関する理論	20
2.2.1 帯水層での井上理論の通気層への拡張	20
2.2.2 不飽和浸透理論を基礎とした通気層での核種移動理論	22
2.2.3 通気層・帯水層を包括した地中での核種移動理論	24
2.2.4 通気層での核種移動の理論に関する最近の動向	27
2.3 通気層でのフォールアウト核種の移動に関するフィールド研究	28
2.3.1 研究の背景と目的	28
2.3.2 実環境条件下（通気層）での降水の浸透	32
(1) 環境トリチウムを利用した降水浸透解析手法の概要	32
(2) 降水トリチウム濃度測定と解析に用いる降水トリチウム濃度データ	37
(3) 土中水トリチウム濃度分布	37
(4) 西山地区における降水浸透速度の推定	42
(5) 結論	46
2.3.3 実環境下でのフォールアウトプルトニウムの地中移動	47
(1) フォールアウトプルトニウムの地表面蓄積濃度分布	48
(2) フォールアウトプルトニウム鉛直濃度分布	52
(3) フォールアウトプルトニウム鉛直浸透速度の推定	59
(4) 分配係数測定へのフォールアウトプルトニウム利用の有効性の検討	61
(5) 結論	63
2.3.4 実環境条件下でのフォールアウト ^{90}Sr , ^{137}Cs の地中移動	63
(1) フォールアウト降下履歴の推定	64
(2) 西山土壌内での ^{137}Cs , ^{90}Sr の分布と移動速度	77
(3) 結論	81
2.4 まとめ	82
参考文献	84

第3章 放射性核種の土壌への吸着に及ぼす環境条件の影響	96
3.1 概説	96
3.2 ^{60}Co の土壌への吸着性に関する実験的検討	96
3.2.1 研究の背景と目的	96
3.2.2 実験方法	97
3.2.3 結果と考察	101
(1) 種々の水圏環境条件内での ^{60}Co 移動能と吸着特性	101
(2) 酸化還元条件の ^{60}Co の底質への吸着特性に与える影響	104
(3) 砂底質－水系内の ^{60}Co の化学形態	108
3.2.4 結論	111
3.3 ^{239}Pu の土壌への吸着性に関する実験的検討	114
3.3.1 研究の背景と目的	114
3.3.2 実験方法	115
3.3.3 結果と考察	118
(1) Pu(IV) の分配係数と溶液 pH	118
(2) 地下水環境内での移動性の高いプルトニウムと移動性の低いプルトニウム	120
(3) プルトニウムの地中移行における土壌微細粒子と地下水中懸濁物の影響	122
3.3.4 結論	125
3.4 フィールドにおけるプルトニウムの移動性	126
3.4.1 研究の背景と目的	126
3.4.2 調査地点と調査方法	127
3.4.3 調査結果と考察	129
(1) フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs および ^{210}Pb の底質コア内での鉛直分布	129
(2) 底質中でのプルトニウムの移動性	132
3.4.4 結論	138
3.5 まとめ	138
参考文献	140
第4章 放射性廃棄物の陸地処分の安全評価手法の検討	149
4.1 概説	149
4.2 内部被曝線量評価モデル	150
4.2.1 被曝線量評価の基本的考え方	150
4.2.2 被曝線量評価モデルの構成のための前提条件	152
4.2.3 被曝線量評価モデルの構成	152
(1) 地中の核種移行	153
(2) 浮遊および大気拡散	160
(3) 食物連鎖による核種移行	161

(4) 核種摂取量および内部被曝線量	170
4.3 モデルの検討	172
4.3.1 パラメータ感度解析	172
4.3.2 放出形態と線量評価	176
4.3.3 モデルの特徴	179
4.4 陸地処分時被曝線量評価ケース・スタディ	180
4.4.1 処分シナリオと処分施設からの核種漏出量予測	180
4.4.2 設定基本条件および入力パラメータの選定	184
(1) 設定基本条件	184
(2) サイト条件およびパラメータの選定	185
4.4.3 被曝線量計算結果	186
4.4.4 被曝線量評価	188
4.5 西山地区におけるフォールアウト・プルトニウムによる被曝線量評価	190
(1) 食物摂取経路からの被曝線量	191
(2) 汚染空気の吸入による被曝線量	193
4.6 まとめ	194
参考文献	196
第5章 結論	207
5.1 本研究の考察	207
5.2 本研究の問題点と将来の研究課題	209
5.3 謝辞	211

表 の リ ス ト

表 1-1	海洋底処分計画（SDPについての各国の動向）
表 1-2	各国における陸地処分の現状
表 1-3	各国における高レベル廃棄物の処分に関する計画
表 1-4	放射性固体廃棄物の陸地処分に関する濃度上限値
表 1-5	地層処分技術開発スケジュール
表 1-6	各種放射性廃棄物の陸地処分のための条件
表 1-7	陸地処分場として望ましい立地条件
表 2-1	1977年～1982年までの東京における月別降水量と降水トリチウム濃度
表 2-2	深度毎の土中水トリチウム濃度分布
表 2-3	土中深度毎の土中水トリチウム濃度分布
表 2-4	長崎における降水量、蒸発量および浸透量（その1）（その2）
表 2-5	西山土壌（0～3cm）プルトニウム、セシウム吸着濃度
表 2-6	コアーNA、NBの土壌物性
表 2-7	西山貯水池および小ヶ倉貯水池底質内での ^{210}Pb 、 ^{90}Sr と ^{137}Cs 鉛直濃度分布
表 2-8	西山地区に蓄積されているフォールアウト ^{90}Sr 量
表 3-1	^{60}Co の砂底質に対する吸着・脱離実験の際の酸化還元条件
表 3-2	透析膜（孔径24Å）を通過した ^{60}Co の割合と、透析膜を通過できる ^{60}Co の内 でジチゾン・ベンゼンによる抽出率と新鮮な砂底質上への吸着率
表 3-3	土壌の物理化学的特徴と地下水水質
表 3-4	土壌プルトニウムの地中移動実験条件
表 3-5	西山貯水池底質（コアーSA、SB、SC）と小ヶ倉貯水池底質（コアーKA） 内の $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs 濃度分布
表 4-1	環境経路と被曝線量評価計算コードの要約
表 4-2	本研究で構築した評価モデルと参考にした評価モデルとの比較
表 4-3	パラメータ感度解析のための変動係数（ $\frac{\partial F}{\partial X_i}$ ）一覧
表 4-4	モデルの検討に用いた環境および食物連鎖に関するパラメータ
表 4-5	絶対感度計算結果とパラメータの影響度の大きさ
表 4-6	感度解析結果
表 4-7	最大被曝線量に及ぼす放出形態の影響

表 4-8	固化パッケージ中の構成核種とその含有量
表 4-9	パッケージの核種拡散係数
表 4-10	被曝線量評価に用いた核種浸出量の経年変化
表 4-11	被曝線量評価に用いたサイトおよび食物連鎖パラメータ
表 4-12	処分場敷地境界における被曝経路ごとの最大被曝線量
表 4-13	フォールアウト ²³⁹ Puによる被曝線量評価に必要なパラメータ

図 の リ ス ト

- 図 1-1 低レベル放射性廃棄物発生量予測
- 図 1-2 低レベル固体放射性廃棄物の陸地処分の流れ
- 図 1-3 高レベル廃棄物地層処分に至るシナリオ

- 図 2-1 自然環境条件下でのCs, Srの存在状態
- 図 2-2 プルトニウム吸着濃度測定のための地表面土壌採取地点および未攪乱土壌コア-NA, NBの採取地点
- 図 2-3 地表面付近の水の動き
- 図 2-4 地層構成モデルと降水浸透量との関係
- 図 2-5 長崎・我孫子の月別降水トリチウム濃度 (May of 1982 to April of 1985)
- 図 2-6 深度別3相(固相、気相、液相)分布と自由水の採水可能量分布
- 図 2-7 NA地点における土中水トリチウム分布と押し出し流れモデルによる解析結果
- 図 2-8 NB地点における土中水トリチウム分布と押し出し流れモデルによる解析結果
- 図 2-9 西山未攪乱土壌中でのBrイオン濃度分布
- 図 2-10 フォールアウト蓄積量調査のための未攪乱土壌コア(0~30cm)採取地点
- 図 2-11 長崎の土壌中の $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の鉛直分布
- 図 2-12 昭和56年10月現在の地表面土壌プルトニウム、セシウム蓄積吸着濃度分布と昭和20年10月の残留放射能等強度曲線
- 図 2-13 未攪乱土壌サンプリング法およびサンプリング作業の様子
- 図 2-14 NA地点における $^{239+240}\text{Pu}$ 鉛直濃度分布
- 図 2-15 NB地点における $^{239+240}\text{Pu}$ 鉛直濃度分布
- 図 2-16 土壌中実測された $^{239+240}\text{Pu}$ の積算吸着量と種々に遅延係数を変化させた理論吸着積算曲線
- 図 2-17 25℃での溶存プルトニウムの化学形と pH-Eh ダイアグラム
- 図 2-18 貯水池底質コア採取地点
- 図 2-19 西山貯水池底質コア-SA内のフォールアウト ^{137}Cs と ^{210}Pb の鉛直分布と東京で観測されたグローバルフォールアウト ^{137}Cs の降下履歴記録との比較
- 図 2-20 西山貯水池底質コア-SB内のフォールアウト ^{137}Cs と ^{210}Pb の鉛直分布と東京で観測されたグローバルフォールアウト ^{137}Cs の降下履歴記録との比較
- 図 2-21 西山貯水池底質コア-SC内のフォールアウト ^{137}Cs と ^{210}Pb の鉛直分布と東京で観測されたグローバルフォールアウト ^{137}Cs の降下履歴記録との比較
- 図 2-22 小ヶ倉貯水池底質コア-KA内のフォールアウト ^{137}Cs と ^{210}Pb の鉛直分布と東京で観測されたグローバルフォールアウト ^{137}Cs の降下履歴記録との比較
- 図 2-23 ^{137}Cs を使った西山貯水池底質コア-SA内での長崎原爆局地フォールアウトとグローバルフォールアウトの降下影響範囲の区分

- 図 2-24 ^{137}Cs を使った西山貯水池底質コア-SB内での長崎原爆局地フォールアウトとグローバルフォールアウトの降下影響範囲の区分
- 図 2-25 小ヶ倉貯水池底質コア-KAとの比較による西山貯水池底質コア-SC内の長崎原爆局地フォールアウトとグローバルフォールアウトの影響範囲の区分
- 図 2-26 西山土壌コア-NA, NB内の ^{90}Sr と ^{137}Cs の吸着濃度鉛直分布
- 図 2-27 西山シルト質ロームの ^{137}Cs 遅延係数推定のための ^{137}Cs 積算吸着量と理論積算吸着曲線
- 図 2-28 西山シルト質ロームの ^{90}Sr 遅延係数推定のための ^{90}Sr 積算吸着量と理論積算吸着曲線
-
- 図 3-1 砂底質と水系における ^{60}Co の存在形態分離フローと非・交換性 ^{60}Co 、非・膜通過 ^{60}Co 、非・イオン ^{60}Co の関係
- 図 3-2 種々の環境における ^{60}Co の移動能の大きさ
- 図 3-3 好気および嫌気条件下で、 ^{60}Co -砂底質-水（淡水および海水）系における溶液pHの変化と ^{60}Co -砂底質上への吸着割合の分布
- 図 3-4 淡水と有機底質を含む系内でのpHの変化に伴う ^{60}Co の移動能の変化
- 図 3-5 嫌気条件下で、海水と底質系でpHの関数としての ^{60}Co 移動能
- 図 3-6 種々のpHに対する、嫌気条件下、好気条件下での海水と底質の造る系内での ^{60}Co の相対的な移動能
- 図 3-7 種々のpHに対し嫌気条件下の淡水と底質の造る系内で ^{60}Co が持つ移動能と比較された嫌気条件下の海水と底質の造る系内で ^{60}Co が持つ移動能
- 図 3-8 ^{60}Co -海水-砂底質系の養生条件を、好気→嫌気状態に、また嫌気→好気状態に急激に変化させた場合のpH変動と ^{60}Co 移動能の大きさの変化
- 図 3-9 ^{60}Co -砂底質-淡水系で ^{60}Co を30日間吸着させた砂底質を海水に暴露した場合の、初期養生条件（好気、嫌気）の違いと暴露時間の経過に伴う ^{60}Co 脱離率の変化
- 図 3-10(a) 嫌気条件下砂底質淡水系での種々の移動能を持つ ^{60}Co の分布
- 図 3-10(b) 好気条件下砂底質淡水系での種々の移動能を持つ ^{60}Co の分布
- 図 3-11(a) ^{60}Co -底質-水系内での ^{60}Co 移動能の大きさと存在率の関係
- 図 3-11(b) ^{60}Co -底質-水系における移動性の高い ^{60}Co と交換性 ^{60}Co の透析膜通過性と、膜を通過した各 ^{60}Co の化学形態
- 図 3-12 pH変化と種々のタイプの ^{60}Co のジチゾン・ベンゼン抽出率と砂底質への吸着率
- 図 3-13 海水中での種々の化学形態を有す ^{60}Co のゲル浸透クロマトグラフによる溶出曲線
- 図 3-14 溶存Puの酸化状態別分離操作フローと分離されるPuの酸化状態
- 図 3-15 pHとプルトニウム（IV価）の分配係数の関係
- 図 3-16 西山シルト質ロームカラム内のプルトニウムの吸着曲線

- 図 3-17 砂質土壌カラムでのプルトニウム移動に及ぼす微細土壌粒子と地下水中懸濁物質の影響
- 図 3-18 プルトニウム溶液中のプルトニウムの酸化還元状態
- 図 3-19 西山コア-S Aと小ヶ倉コア-K A内での ^{210}Pb 、 ^{137}Cs と $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度分布とフォールアウト降下年代
- 図 3-20 コア-S Aにおける粒子混合係数 (D_p) の推定
- 図 3-21 コア-S Bにおける粒子混合係数 (D_p) の推定
- 図 3-22 コア-S Cにおける粒子混合係数 (D_p) の推定
- 図 3-23 底質コア-S Aにおけるフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ 分布と理論分布曲線
- 図 3-24 底質コア-S Bにおけるフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ 分布と理論分布曲線
- 図 3-25 底質コア-S Cにおけるフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ 分布と理論分布曲線
-
- 図 4-1 安全評価フロー
- 図 4-2 想定した放射性核種の移行経路
- 図 4-3 ^{60}Co の被曝線量の時間変化
- 図 4-4 ^{90}Sr の被曝線量の時間変化
- 図 4-5 コンクリートピットからの放射性核種漏出の概念図
- 図 4-6 腐食経年パターンの仮定
- 図 4-7 処分施設からの年間核種漏洩量
- 図 4-8 サイトの立地条件
- 図 4-9 処分場敷地境界からの距離および地下水流速の大きさと地下水経路を通じて ^{90}Sr によって与えられる被曝線量の相対変化
- 図 4-10 被曝線量の時間変化

記 号 表

\overline{A}	: 底質堆積速度
A_{CS}	: 耕作土壌面積
A_{fw}	: 表面水の表面積
A_{ME}	: 牧草地面積
A_{PS}	: 処分場面積
A_{ts}	: 表面土壌の面積
a_L	: 流れ方向の分散能
a_m	: 分子拡散係数
a_T	: 流れに対して垂直方向の分散能 (dispersivity)
B_{gw}	: 地下水の海への流入面積
C	: 放射性核種の地下水中濃度
C_a	: 通気層液相核種濃度
C_g	: 帯水層液相濃度
$C_{(pb)}$: 堆積層 h の深さでの ^{210}Pb の放射能
CF_{ep}	: 耕作物の核種移行係数
CF_{ff}	: 淡水産物の核種濃縮係数
CF_{MA}	: 牧草の核種移行係数
CF_{sf}	: 海産物の核種濃縮係数
$Co_{(pb)}$: 堆積層表面での ^{210}Pb の放射能
\overline{D}	: 分散係数テンソル
D_d	: 分子拡散係数
D_{ij}	: テンソル \overline{D} の成分
D_m	: 標準拡散係数
D_P	: 粒子混合係数
D_z	: 通気層深さ方向拡散係数

D_x, D_y, D_z	: 放射性核種、地下水の x, y, z 方向の拡散係数
d'	: 流体の修正圧縮係数
d_{ts}	: 吸着／浮遊に関与する表面土壌厚さ
e_a	: 温度 T_a のときの飽和水蒸気圧
e_d	: 大気中水蒸気圧
F	: 一般化された比貯留係数
$F_{a,P}$: 畜産物 P に関する核種の希釈率
$F_{ff,P}$: 淡水産物 P に関する核種の希釈率
$F_{P,P}$: 耕作物 P に関する核種の希釈率
$F_{sf,P}$: 海産物 P に関する核種の希釈率
F_w	: 核種の臓器 m 内への移行率
f	: 地層の空隙率
f_a	: 通気層空隙率
f_{cs}	: 耕作土壌空隙率
f_g	: 帯水層空隙率
f_i	: 該当する年に降ったフォールアウト ¹³⁷ Csの全グローバルフォールアウトに占める割合
f_{ME}	: 牧草地空隙率
f_{ts}	: 表面土壌空隙率
H	: 全水頭
H_e	: 浮遊のおよぶ高さ
h	: 圧力水頭
h'	: 堆積層深さ
I_{ar}	: 人の呼吸による空気摂取量
I_{dw}	: 人の飲料水摂取量
$I_{a,P}$: 畜産物 P の摂取量
$I_{ff,P}$: 淡水産物 P の摂取量

$I_{p,p}$: 耕作物 P の摂取量
$I_{sf,p}$: 海産物 P の摂取量
$ar I_{ea}$: 動物の呼吸量
$f_w I_{ea}$: 動物の表面水取水量
$ma I_{ea}$: 動物の牧草摂取量
\overline{K}	: 透水係数テンソル
K_2	: 耕作物への核種沈降割合
K_f	: 帯水層での時間変換ファクター
K_{fu}	: 通気層での "
K_{ij}	: 不飽和透水係数成分
K_r	: 相対透水係数
K_s	: 吸着相における分解速度定数
K_{ij}^s	: 飽和透水係数成分
K_w	: 液層における分解速度定数
k	: 換算係数
k_a	: 通気層分配係数
k_{cs}	: 耕作土壌分配係数
k_d	: 放射性核種の地下水（液相）と土壌（固相）間の分配係数
k_z	: 帯水層分配係数
k_{ts}	: 不飽和条件下での表面土壌の分配係数
k_{tss}	: 飽和条件下での表面土壌の分配係数
k_x	: 海水中拡散係数（沖合方向）
k_y	: " （海岸線方向）
k_z	: " （深さ方向）
M	: 人工的に系へ投入される物質ソースの量
M_{sw}	: 海への流入核種量（ $g_w M_{sw}$ または $f_w M_{sw}$ ）
N	: 可照時間

N	:	臓器 m の質量
n	:	間隙率
n	:	日照時間
Q	:	系外からの涵養量（正）あるいは揚水量（負）
Q_{CS}	:	吸着に関与する耕作土壌分体積
Q_{fL}	:	洪水の水量
Q_{fW}	:	核種を含まない水の表面水流入量
Q_{tS}	:	吸着に関与する表面土壌の体積
Q_{ME}	:	吸着に関与する牧草地体積
$_{fW}Q_{SW}$:	表面水の海への流入面積
$_{tS}Q_{fW}$:	雨水の表面水への流入量
q	:	水分のフラックス
q	:	放射性核種の土壌中濃度
\overline{R}	:	有効降雨量
R	:	遅延係数
R_a	:	通気層遅延定数
R_A	:	大気外可能最大日射量
R_e	:	浮遊係数
R_g	:	帯水層遅延定数
S	:	吸着量
s	:	通気層水分飽和度
T	:	地下水の移動を測る時間スケール
T^*	:	屈曲度 (tortuosity)
T_a	:	平均気温
$T_{1/2}$:	放射性核種の半減期
T_{Fea}	:	動物から畜産物への核種移行率
T_o	:	有効時間

t	: 放射性核種の移動を測る時間スケールまたは単なる時間
t_i	: グローバルフォールアウト降下後の経過年
t_o	: 原爆後の経過年
U	: 水の浸透速度
U_z	: 高さ 2 m での平均風速
U_x	: 地下水流速
U_z	: 通気層浸透水流速
V_s	: 溶液の体積
V	: 海流速度
$\rightarrow V$: ダルシー流速
V_g	: 核種沈降速度
$\rightarrow V_s$: 圧密による媒体の変位速度
V_o	: 池、沼等の体積
V_x, V_y, V_z	: 地下水の x, y, z 方向の流速
v	: 池、沼等からの流出水量
v_o	: 地下水の湧出量
W	: 土壌の重量
w_x	: 風速
x_i	: 距離座標成分
Z	: 位置水頭
Z	: 地表面からの距離
Z_g	: 帯水層厚さ
Δ	: 飽和水蒸気圧曲線の勾配
$\Delta \mu$: 化学ポテンシャル低下量
α'	: 媒体の修正圧縮性係数

γ	:	乾湿計定数
δ_{ij}	:	クロネッカーのデルタ
ε	:	核種の臓器内有効エネルギー
θ	:	体積含水率
λ	:	崩壊定数
λ_e	:	核種の実効崩壊定数
μ	:	土中水の化学ポテンシャル
μ_o	:	基準の純水の化学ポテンシャル
ξ	:	蒸発比
ρ_b	:	媒体（土壌）のみかけ密度
ρ	:	地層を構成する土壌の密度
ρ_a	:	通気層真密度
ρ_{cs}	:	耕作土壌真密度
ρ_f	:	流体密度
ρ_g	:	帯水層真密度
ρ_{ME}	:	牧草地真密度
ρ_{ts}	:	表面土壌の真密度
σ_s	:	Stefan定数
σ	:	拡散巾
σ_y	:	水平方向拡散幅
σ_z	:	鉛直方向拡散幅
τ_o	:	臓器 m の被曝時間
ψ	:	毛管ポテンシャル

第1章 緒 論

1.1 はじめに

文明の発達と共にエネルギーの消費量は増加し、エネルギーの種類と生産方法は多様化してきた。原始時代に初めて人類は火を手にし、その後長く薪や獣脂による自給自足のエネルギー確保の時代を過した。18世紀に、火で水を蒸気に転換させその力を利用する蒸気機関の発明によって人類の生産活動は、飛躍的に進歩した。それに伴い、エネルギーの主体は、薪から石炭へと移行した。20世紀初頭に中東での石油生産の開始と内燃機関の発達に伴い、石炭・石油よりもさらに良質のエネルギーである電気への転換が急激に進んだ。

電気は、すでに現在の人類文明を支える最も重要な基幹エネルギーへと成長した。安価で良質な電力の安定供給のために、戦後の復興期には水力を、また高度経済成長期には火力を中心に電力生産が行なわれてきたが、第1次、第2次オイルショックにより、石油一辺倒のエネルギー依存政策からの脱却が図られた。これを契機に1960年代後半にすでに開始されていた原子力発電への期待も高まり総発電量に占める割合も急激に伸び、すでに17%に達しており、その規模も1987年2月現在商業用原子力発電所15ヶ所 稼働原子炉33基で約2568万kwである⁽¹⁾。

原子力発電規模は、今や自由主義諸国の中では米国、フランスについて第3位である⁽²⁾が、発電によって生じる放射性廃棄物処分の面からは、その立ち遅れは著しく、発電開始以来生じたすべての放射性廃棄物は、発電所構内に保管貯蔵されている。例えば、低レベル放射性廃棄物の場合、1984年現在200ℓドラム缶換算で40万本に達しており、1990年には60万本に達するものと予測されている⁽³⁾。このまま放射性廃棄物（特に低レベル廃棄物）の処分が出来なければ、我国の原子力発電の円滑な運営に大きな影響を及ぼすものと危惧されている。

低レベル放射性廃棄物は、当初1980年を目途に北太平洋の水深6000mの海域において海洋投棄処分される予定であったが、南太平洋諸国の反対や、1983年2月のロンドン会議による一定期間の海洋投棄中止の決議によって、現実にはその実施は極めて困難な状況に陥っている。海洋投棄処分に替るものとして、陸地処分が大きくクローズアップされ1990年を目途に青森県六ヶ所村において当面100万本の処分が開始されるべく準備が進められている。しかしながら処分とは、人間の管理の外に置くことから、不測の事態の発生による

放射能での環境汚染の可能性は否定できない。

放射能による環境汚染に対する受けとめ方はここ一年の間に大きく変化した。すなわち1986年4月26日に起ったチェルノブイリ原子力発電所の事故は⁽⁴⁻⁷⁾、大量の放射能（例えば ^{131}I ：7.3MCi、 ^{137}Cs ：1.0MCi、 ^{90}Sr ：0.2MCi、 ^{239}Pu ：700Ci等）を環境中へ放出し地球を広く汚染した⁽⁸⁾。 ^{137}Cs に限って言えば、放出された ^{137}Cs の量は1963年までの核実験によって放出された総量の約1割にも達し、ヨーロッパ（パリ）⁽⁹⁾では、バックグラウンド値が2倍にまで上昇しており、チェルノブイリから8000kmも離れた日本においても1959年以来降下蓄積された総量の2%に匹敵するフォールアウト ^{137}Cs が降下したと見積られている⁽¹⁰⁾。この事故の結果、原子力発電全体に対する信頼性が著しく低下し、放射能による環境の汚染に対する関心が一挙に高まった。この事故によって、放射能による環境汚染は極めて厳しく規制・管理される方向に向うものと思われる。

このような状況の下で、原子力発電の存続をかけた放射性廃棄物の陸地処分を実現させるためには、処分施設からの放射性核種の漏洩を極力押える努力と共に、万一施設外へ漏れた場合でも一般公衆への影響が無視出来る程度であることをあらかじめ確認しておく必要がある。そのためには、漏洩核種の環境内での移行挙動に関しフィールド研究等を通じ十分に熟知した上で合理的な安全評価が行なえるよう研究を進めておく必要がある。

1.2 放射性廃棄物の陸地処分

前節1.1でも述べたように我国の原子力発電容量は、2568万kwに達し、放射性廃棄物の発生量も年々増加しており、低レベル放射性廃棄物に限ってみても、1984年9月の原子力委員会、放射性廃棄物対策専門部会の試算⁽³⁾によれば、図1-1に示すように200ℓドラム缶5万本/年、容積にして1万 m^3 /年で1990年には、原子力施設全体では蓄積量は100万本にも達する勢いである。これら放射性廃棄物の処分方法としては、含まれる放射性核種の種類と放射エネルギーを勘案して次の5つの方法（海洋処分、陸地処分、海洋底処分、消滅処分、宇宙処分）が検討されている。まず以下に陸地処分以外の4つの処分方法について概説する。

(1) 海洋処分

低レベル放射性廃棄物を対象として欧州諸国（イギリス、ベルギー、オランダ等）が北太西洋で実施してきた。この方法は、大量の海水による拡散希釈効果と減衰を期待し

たもので、一度処分するとその後のモニタリングや回収が困難であるという欠点もある。
また、1983年のロンドン会議において海洋処分の安全性に対し科学的検討が終わるまで
処分を停止することが決議されて以来、実質的には中止されている⁽¹¹⁾。

(2) 海洋底処分

これは、高レベル廃棄物を対象として海洋処分と陸地処分の利点を合せ持つものとし
て1974年米国⁽¹²⁾で研究が始まったが、1975年 OECD/NEAの基に Seabed Working Group

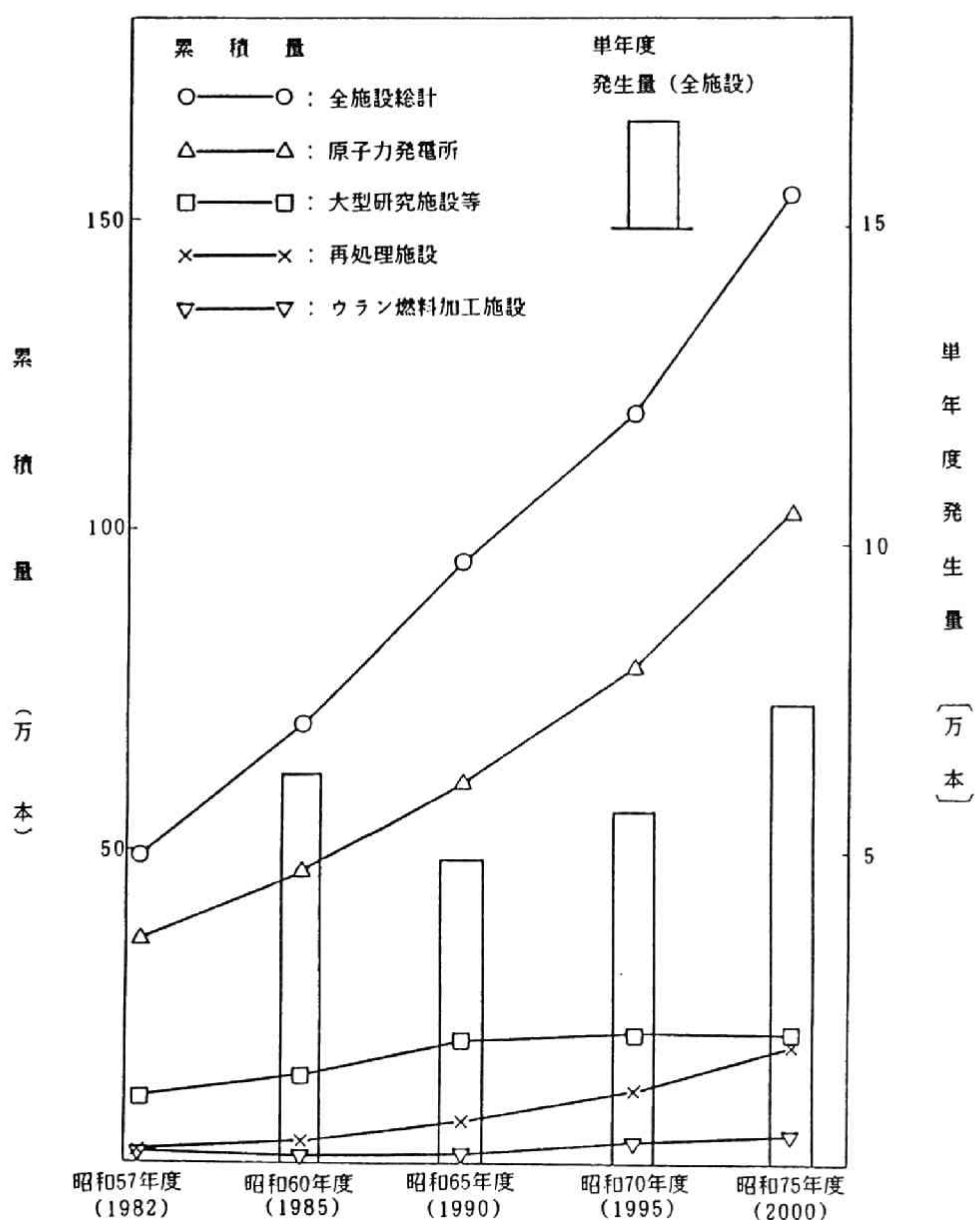


図 1-1 低レベル放射性廃棄物発生量予測 (文献(3)より引用)

(極低レベル放射性廃棄物を含む) (200ℓドラム缶換算)

が設けられ、カナダ、西独、フランス、日本、オランダ、スイス、英国、米国等が参加して、科学的、工学的、法制面からの検討がなされている⁽¹³⁾。実際の処分方法としては、ペネチレーターによる貫入法とドリル法が検討されている。各国での開発計画等を表1-1⁽¹⁴⁾に示す。

(3) 消滅処分

高レベル廃棄物の地層処分に代る1つのオプションとして、我国でも国が策定した放射性廃棄物処理処分方策の中でも位置付けられている。現実には、高レベル廃液の中からTRUのみを群分離抽出して、核燃料としてリサイクルすることを含めた消滅処分の有効性等が検討されている⁽¹⁵⁾。現時点では、群分離と消滅処分を一体化した考え方よりも、再処理の高度化技術の一端として群分離技術の開発を進め地層処分との組合せも検討されている⁽¹⁵⁾。

(4) 宇宙処分

高レベル廃棄物処分の1つとして米国では真剣に検討された経緯がある⁽¹⁶⁾。ロケットの打ち上げ技術の向上と経済性がこの処分方法の成立性の鍵を握っていると言える。群分離によって高レベル廃液の中から核燃料としてのリサイクルが出来ないAm、Cm、Np等のみを抽出減容し宇宙処分することは大いに有効であると考えられている⁽¹⁵⁾。

前記4つの処分方法に比べ現時点では、低レベルから高レベルまでの放射性廃棄物に対し最も実用的な処分方法と考えられる陸地処分について以下に該略する。

「陸地処分とは陸地を主とする多重バリアにより廃棄物の放射能を閉じ込め隔離し、その間に放射能が減衰して許容レベルあるいは de minimis level以下となることを期待するものである」と定義できる。一般に土壌(地層)には、大きなイオン交換容量⁽¹⁷⁾あるいは死空隙(Dead pore)への拡散効果⁽¹⁸⁾を有するものも多く、さらに地下水の流れが、緩やかであることから、放射性核種の移動は地下水の移動よりも一層遅くなる。時間的な遅れの間に放射崩壊による減衰が期待できる。この意味で地層を天然バリアーと呼んでいる。また、廃棄物からの放射性核種の浸出性を押えるためのパッケージング(セメント、アスファルト、プラスチック、ガラス等による固化と、ドラム缶やキャニスター容器への充填)と、浸出核種の地層中への漏洩を防ぐためのコンクリートピット等の施設を総称して人工バリアーと呼んでいる。一昔前までの陸地処分の多くが天然バリアー効果にのみ期待していたのに比べ、最近では環境への放射能の漏洩を出来る限

表 1-1 海 洋 底 処 分 計 画 (S D P に つ い て の 各 国 の 動 向)

(文献04から引用)

	米 国	カ ナ ダ	英 国	フ ラ ン ス	オ ラ ン ダ	西 独	日 本	ス イ ス	E C	ベ ル ギ ー	イ タ リ ー
基 本 方 針	現時点では地層処分が優先でSDPは代替案であるが1990年までに可能性を明らかにし、もしよければ地層処分第2候補地に代りうるものとする。当面OECD/NBAの国際協力の枠内で進める。	硬質岩中への地層処分のみが現実の対策であり、SDPは将来の可能性の追及である。SDPの考え方は国際的コンセンサスが必要で、環境が受け入れ可能になるまでは実施すべきではない。現在SDPに期待せず。	SDPは可能性を追求しているが、優先度は地層処分と同等。1990年迄に評価を終える予定。LDCの適用については公式見解を持たない。	地層処分が第1優先でSDPは地層処分の特殊ケースであるが、LDCの海洋設置とは全く異なる概念として認識している。国際的な枠組の中で行なう。 α -wasteにも適用可能。LDCの適用は公式には表明しない。	岩塩層への地層処分を優先しているがさし当り暫定貯蔵が最優先。LDCのSDPへの適用については公式には表明しない。原子力を今後進めてゆくかという政策は未定、これが決ると方針も変わる。	岩塩ドームへの地層処分が第1優先。SDPは国際的研究にふさわしい。	地層処分が本命であり、SDPは代替技術と考えている。しかしL.L.Wの海洋設置に関する海洋物理生物学的研究、安全評価等はSDPの評価と共通する点が多い。	1985年に計画を拡大する。	地層処分を第1優先に考え、SDPはオルタナティブ。	Boom Clay 層への地層処分が本命でSDPは代替案。しかし海底堆積層は粘土と似ていてその意味で今の地層処分の研究が役立つ。オブザーバとして参加。	オブザーバとして参加する。粘土層への処分をゆっくり開発するの で、SDPの国際的研究を当面は見守る。公式研究計画はない。
関 心 事 項	LDCにてらしてSDPの立場を法的に明確にすること。	深海、深海底の科学的調査研究。 Great Meteor East.	大西洋の7研究立地(中でもGreat Meteor Eastに希望をつないでいる)深海スキャンゾナー、コア採取による立地の特性把握。	技術的可能性と安全性の実証のための科学的調査。	サイトの選定。	ニアフィールド、安全評価。種々の問題点の科学的アプローチ。	LDCとの関連性、海洋物理、生物学的研究。	システムアナリシス、立地選定、生物学、海洋物理、堆積層、固化体。	安全評価。模擬実験。位置置試験。	ニアフィールドと海底堆積層の特性。海洋生物学。	深海底の堆積物。バクテリアの問題。
研 究 ・ 開 発 の 内 容	太平洋の5つの場所での海底調査。 Near field, Far fieldの性質と処分との影響。 Waste form, ベネトレーター開発、海洋底への固化体収納技術、破壊評価。	地質学的研究と海底試料採取のための航海を行なっている。 Th/Pa法でのdating法開発。 核種の生物学的挙動。	エンジニアリングテストと実験室での研究を並行させている。 ベネトレーターを米国と協力開発中(30-50m)。 キャニスタ腐食、耐食材料開発、堆積層のバリア性、核種の生物学的/地質学的移行、海洋物理モデル等を開発中。	ベネトレーター開発。 1979、80年にわたり堆積層コア採取のための航海した。 採取試料は試験中。 核種の生物学的挙動。	種々のベネレクター(50m)を開発。 海底コア試料の採取、化学分析。 Np, Pu, Am, Cd等のKd測定。 生物学的及び微生物学的研究。 海水の流れ状況。サイトサーベイプログラム。	海洋物理学のモデリングを開発している。 生物学的研究。 海水中での核種の垂直分布。	過去にL.L.Wの海洋設置の安全性評価のために、太平洋の候補地点での海洋物理、生物学的研究を行なった。現在SDPと直接関係はないがwaste form, キャニスタ等について、地層処分と共通の試験を行なっている。	L.L.Wの海洋設置のモニタリング。 岩石固化体研究。	SDPに関連させて地層処分の研究を多く行なっている。 堆積層および堆積層による核種吸着と移行。中での核種の挙動。生物学的研究。 リスクアナリシス。海洋物理学。 ガラス浸出挙動等。	直接SDPに関しないが粘土の試験を行なっている。 海洋生物学的研究。	公式にはSDP関係については何もしていない。 ベネトレーターの開発計画がある。
予 算	1984 7.5M\$ (18億円) 1985 12.4M\$ (30億円)	0.6M\$ (1.5億円) 地層処分予算 37M\$ (90億円)	2.5Mポンド (10億円)	0.8~1M\$ (1.9~2.4億円)	0.6M\$ (1.5億円)	地層処分全体 2.3マルク (190億円)	300万円。 廃棄物関係全予算は凡そ100億円余。	25万ドル (L.L.Wのモニタリング) (6,000万円)	1.6M\$ (4億円)		地層処分(岩塩層、粘土層、堆積層)開発経費。 40M\$ (96億円)
そ の 他	SDPを急いではない。 軍用H.L.Wは3000億リットルの形、商用spent fuelは11,000t、2000年には58,000tを予定。	spent fuelの花崗岩体への処分を研究中、規制当局受け入れに立地選定するが1990年以前には結論は出さない。処分は早くても来世紀早々でそれまではリトリバブル貯蔵を行う。	H.L.Wは現在約1000m貯蔵中、これを固化すると200mになる。50年間は冷却貯蔵を行なう。地層処分に大きな反対はない。	いつ迄にSDPの評価を行なうというタイムリミットはない。 H.L.W固化体は2000年約3000m。	現在はH.L.Wはない。1991年に返還H.L.Wが戻ってくる予定。	Integrated waste management conceptを打出し、2000年には工業規模での実施を考慮。 H.L.W固化体は2000年約5000本。 Kr, H-3等の海洋処分を研究中。	2000年でH.L.W固化体は約10,000本。 2000年頃に地層処分技術の実証を予定。	スイス北部の花崗岩体中への処分を考えており、2000年ころ技術確立の予定。	今世紀末に粘土層処分の可否を決める。 Rad wasteの管理責任はONDRAF/NIRASに在る。	現在H.L.Wは数10mあるのみ、地層処分の立地が決ると反対が起こるだろう。	

表 1-2 各国における陸地処分の現状

国 名	ア メ リ カ	ア メ リ カ	ア メ リ カ	ア メ リ カ	ア メ リ カ	ア メ リ カ
処 分 場 所	バーンウェル	リッチランド	ビーディ	シェフィールド	ウエストバレー	マキシ・フラッツ
管 理 者	CEN (ケミニュークリア社)	USエコロジー社	ニュークリア エンジニアリング社	ニュークリア エンジニアリング社	ニュークリア フューエルサービス社	ニュークリア エンジニアリング社
現 状	39.7万 m ³ を処分した。 (3,285,000 ci)	10.2万 m ³ を処分した。 (950,000 ci)	9.2万 m ³ を処分した。 (368,000 ci)	閉 鎖	閉 鎖	閉 鎖
サ イ ト	位 置	サウスカロライナ州 (オーガスタ市の 南東70km)	ワシントン州リッチモンド	ネバダ州	イリノイ州	ニューヨーク州
	広 さ	64.7万 m ²	40.5万 m ²	32万 m ²	8.1 万 m ²	10万 m ²
	地 質	砂, 粘土 地下水位 (-15m)	粘土, 砂礫 (150m以上の厚さ) 地下水 (-70m)	沖積土と礫 (厚さ200m以上) 地下水 (-80~90m)	水成土, 砂, シルト礫 地下水 (-1~-10m)	頁岩, 細粒砂岩, 砂岩
処 分 対 象 物	低レベル (コンテナ収納)	低レベル (ダンボール・ 合板容器を禁ず)	低レベル (ダンボール・ 合板容器を禁ず)	低レベル (ドラム缶 210ℓ) 木箱, ダンボール	低レベル	低レベル (固体廃棄物) 鋼ドラム缶, 木箱, ダンボール
処 分 基 準	10CFR61に準ず	10CFR61に準ず (特別核物質の 処分はできない)	10CFR61に準ず			
処 分 容 量						
処 分 方 法	パッケージ化された固体廃 棄物を雑多に並べ端からブ ルドーザにより埋戻し砂で 覆い処分する。	地表から0.6 mまで埋設 2 ~3 mの土砂, 砂利で盛土	トレンチ表面から1 mまで 廃棄物を入れ, 地表上0.6 mまで盛土	地表下0.6 mまで廃棄物を 入れ, 粘土層で1 m盛土	トレンチ中央部は地表ま で廃棄物を入れ, 盛土3 m 以上	トレンチがいっぱいになる と1 mの覆土ローラーで締 め固め
処分施設の種類	トレンチ 300×30×6~7 m (深さ) ピット 150×15.3×6.7 m (深さ)	旧タイプ 12×90×6~12 m (深さ) 新タイプ 18×240×6~12 m (深さ)	トレンチ 12~15 m×260 m 深さ 8 m	トレンチ 15~18×150 m (深さ6~8 m) トレンチ両側底部に ピット設置	トレンチ	トレンチ 長さ 76~110 m 幅 6 m 深さ 6 m

表 1-2 各国における陸地処分の現状 (続き)

国 名		イ ギ リ ス	フ ラ ン ス	西 ド イ ツ	ス ウ ェー デ ン	ス イ ス	カ ナ ダ
処 分 場 所		ドリッグ処分場	ラ・マンシュ	アッセⅡ	SFR-1	未 定	CRNL, WNRE, BNPD, GNPD
管 理 者		BNFL (英国核燃料公社)	ANDRA (実務は S i S A)	PTB (連邦物理技術研究所)	SKBF (スウェーデン 核燃料供給公社)	CEDRA (放射性廃棄物 貯蔵協会)	AECL オンタリオハイドロ
現 状		4つのトレンチを終了 現在5つ目で処分中	運 転 中 (約40万m ³ のうち 23万m ³ を処分済)	処 分 中 断 中 (1978以降)	1988年運開予定	1995年年以降の予定	チョークリバー (CRNL) は鎖閉
サ イ ト	位 置	セラフィールド	フランス西部ノルマンデ イー地方シェルブールの 西約25km	ブラウンシュバイクの 東南20km	FORSMARK原子力発 電所の近く海底50mの深 さ	10ヶ所の候補地について 評価中	ブルース発電所 ジェントリー発電所
	広 さ	100万m ²	12万m ²	350万m ² 中30万m ² を利用			
	地 質	岩盤厚15~40mの不透水性 粘土層	頁岩、砂岩、珪石、石英砂 (地下水位-10~-20m)	岩盤、カリ塩、硫酸苦土	岩 層	無水酸層、オパール層、泥 灰層、粘土片岩層、花崗岩 層、片麻岩層等を対策	
処 分 対 象 物		発電所及びアイソトープ事 業所からの低・中レベル廃 棄物	発電所、原子力施設から発 生する廃棄物	コンクリートまたはアスフ ルト固化体	発電所から発生する廃棄物	低・中レベル廃棄物	低・中レベル固体廃棄物
処 分 基 準		β r : 0.06 Ci/m ² 以下 α : 0.02 Ci/m ² 以下	固体又は固化されている事 α : 2×10^4 MPC β r : 10^7 MPC以下	低レベル 25 Ci/m ² 以下, 200 mrem/hr以下, 中レベル 25~10 ⁴ Ci/m ² 200~1000 mrem/hr			
処 分 容 量		使用可能面積20万m ²	100,000万m ²	低レベル12.5万本 中レベル 1,300本 } 処分済	100,000m ²	300M×500M位 放射性物質 2,000kg 容器は60,000m ²	
処 分 方 法		廃棄物をトレンチ内に投入 し、地表まで1mを残して 積み、地表面まで覆土し、上部を 地固めする。	下部：コンクリートピット (モノリス)内に廃棄物を 投入し、コンクリートを投 入 上部：モノリスの上部に外 周をコンクリート容器、内 部にドラム缶、ケーソンを 置き土砂、粘土、表土にて 被う(チュムラス)	初めたて積みしていたが、 1974年から作業時間短縮の ためドラム缶を地下に転 落していた。 その後再取り可能なよう に廃棄物を並べて岩盤で 覆う方式に戻した。	サイロにはパッケージを積 みパッケージ設置後コン クリートで埋め戻す。	セメント固化後、コンテナ に詰め暫定的に貯蔵した後、 さらにコンクリートで固め、 防水性物質で包み安定した 岩層中におく	・トレンチが一杯になった ら覆土 1m ・中レベル廃棄物は、コン クリートバンカー、タイ ルホールに収納し鋼製の ふたをしてコンクリート でシール
処分施設の種類		素掘りトレンチ 幅20~25m、深さ8m、 長さ700m 50mごとに防火のため非埋 設部分を設ける。	直方体状の コンクリートピット (5m×5m×7m深さ)	地下空洞 地下490~750m (13層/131室) 標準的な空洞は 60m×40m×15mH	サイロ (28mφ×51mHの 直円筒状) トンネル (幅6.5m、高さ8.1m) 空洞 (90.5m×104m)	岩盤中の空洞	・CRNLとWNREでは 素掘りトレンチ ・BNPD、GNPDでは コンクリートバンカー、 コンクリートトレンチ

(文献(22)より引用)

- 8 -

り小さく押えるためには、評価が困難で不確実さの残る天然バリアーよりも確実性の高い人工バリアーに多くを期待しようという方向に思想の転換が進んでいる。。ただし、長寿命核種に関しては、天然バリアーに多くを期待するということは当然である。しかしながら一方ではこのような状況の変化が生じていることも事実であり、これらが、我国の陸地処分の方策等に強く影響を与えている。以下表 1-2 ～ 1-3⁽¹³⁻²²⁾ に諸外国での低レベルおよび高レベル廃棄物の陸地処分の現状と研究開発の動向を整理する。

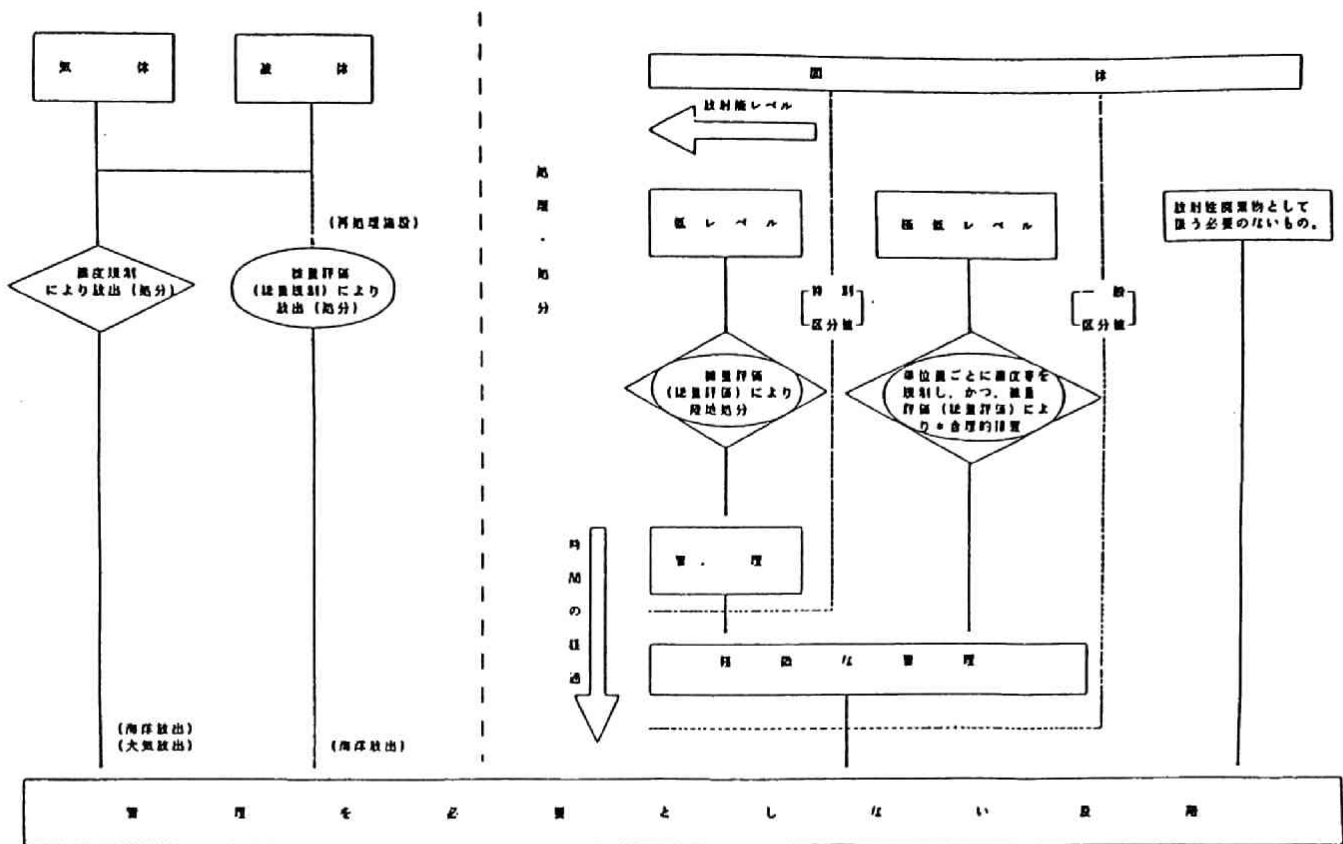
1.3 我国における放射性廃棄物処分

1.3.1 我国における放射性廃棄物処分の現状

すでに 1.1 節でも述べたように我国では、原子力発電所を含め全原子力施設より今日までに発生した放射性廃棄物はすべて発電所構内等に保管貯蔵されており処分した実績はない。当初、低レベル廃棄物は、北西太平洋に海洋投棄処分の予定で計画準備が進められ、処分の安全性の評価まで終了していた⁽²³⁾。しかし、その後、南太平洋近隣諸国の反対やロンドン会議での決議によって事実上中止せざるを得なくなった。この情勢を踏まえ 1984 年 8 月に原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会が出した「放射性廃棄物処理処分方策について」⁽³⁾（中間報告）の中では、陸地処分の早期実現に向けた具体的な検討結果が報告された。それによれば低レベル廃棄物の処分に関しては、最終貯蔵から陸地処分への移行の概念と、技術面および法制面からの基盤整備の方向性がより明確となった。また高レベル廃棄物処分に関しては、地層処分を主体としながらも海洋底下処分と消滅処分についても技術検討を進めていくとの方針が示されている。

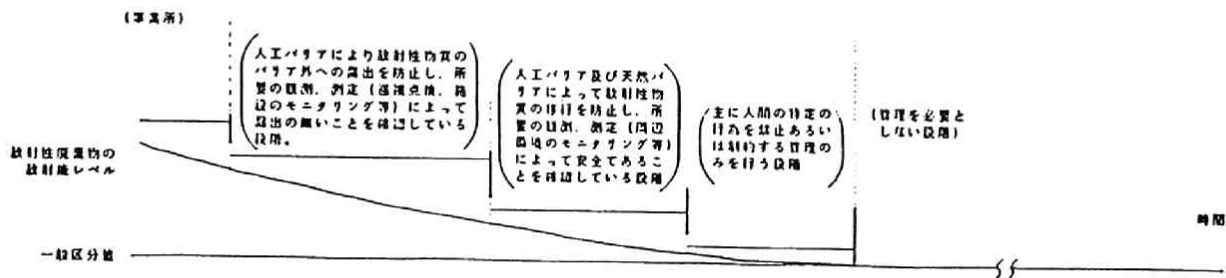
1.3.2 我国における放射性廃棄物の陸地処分のシナリオと計画

すでに低レベル気体および液体廃棄物に関しては、濃度規制を経て大気及び海洋へ放出処分されている。一方固体の低レベル放射性廃棄物の場合には、最終貯蔵を経て陸地処分されるシナリオがすでに確認されている。従来の考え方と大きく異なる点は、処分される低レベル廃棄物をその含まれる放射能濃度によって 3 つに区分（低レベル廃棄物、極低レベル廃棄物、放射性廃棄物として取扱う必要のない廃棄物）し、各々に対し管理・処分の方法を規定した点にある。これは、極低レベル廃棄物を一般廃棄物並みに扱ってよいとする「スソ切」構想に対応するものである。3 つに区分された（放射性）廃棄物は、図 1-2 に示すように管理および処分が行なわれる。また放射性廃棄物と一般廃棄物とを区分す



廃棄物の処分の流れ

・合理的措置には隔異な処分と再利用が含まれる。



低レベル廃棄物の放射能レベルと管理期間

図 1-2 低レベル固体放射性廃棄物の陸地処分の流れ (文献(3)より引用)

る基準としての無束縛限界値の導入がはかられその値については、核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律施行令第 13 条 8 に示されている⁽²⁴⁾。表 1-4 その値を示す。

高レベル放射性廃棄物の処分については、「放射能が減衰して、環境汚染あるいは放射能の影響のおそれが十分に軽減されるまで長期間にわたり人間環境から隔離するために、地下 数100メートルより深い地層中へ処分を行ない、天然バリアと人工バリアを組合せた多重バリアとする」という基本姿勢に従って図 1-3 および表 1-5 に示す手順および開発研究を行ない地層処分の実現が計画されている。

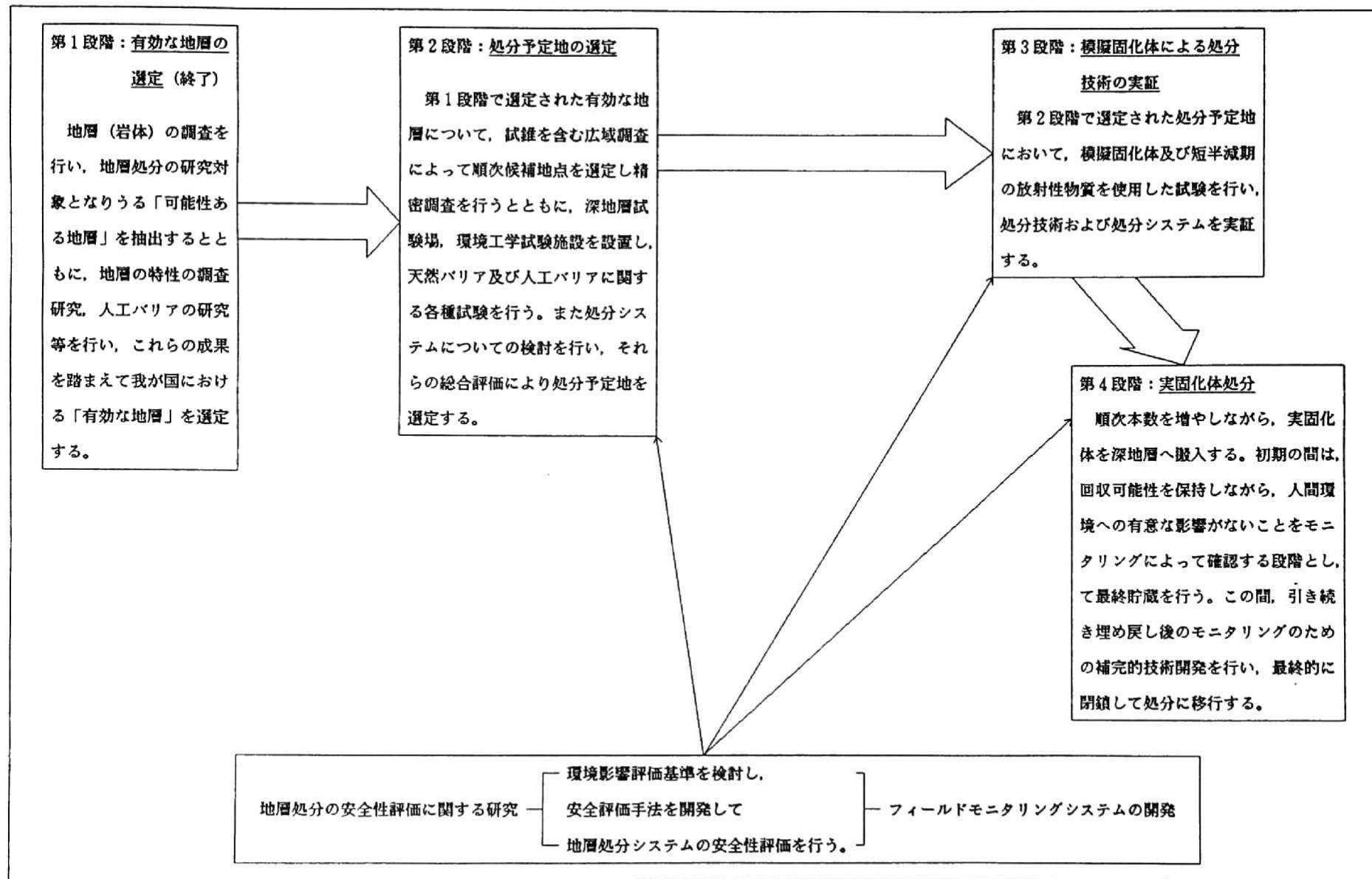


図 1-3 高レベル廃棄物地層処分に至るシナリオ（文献(3)より引用）

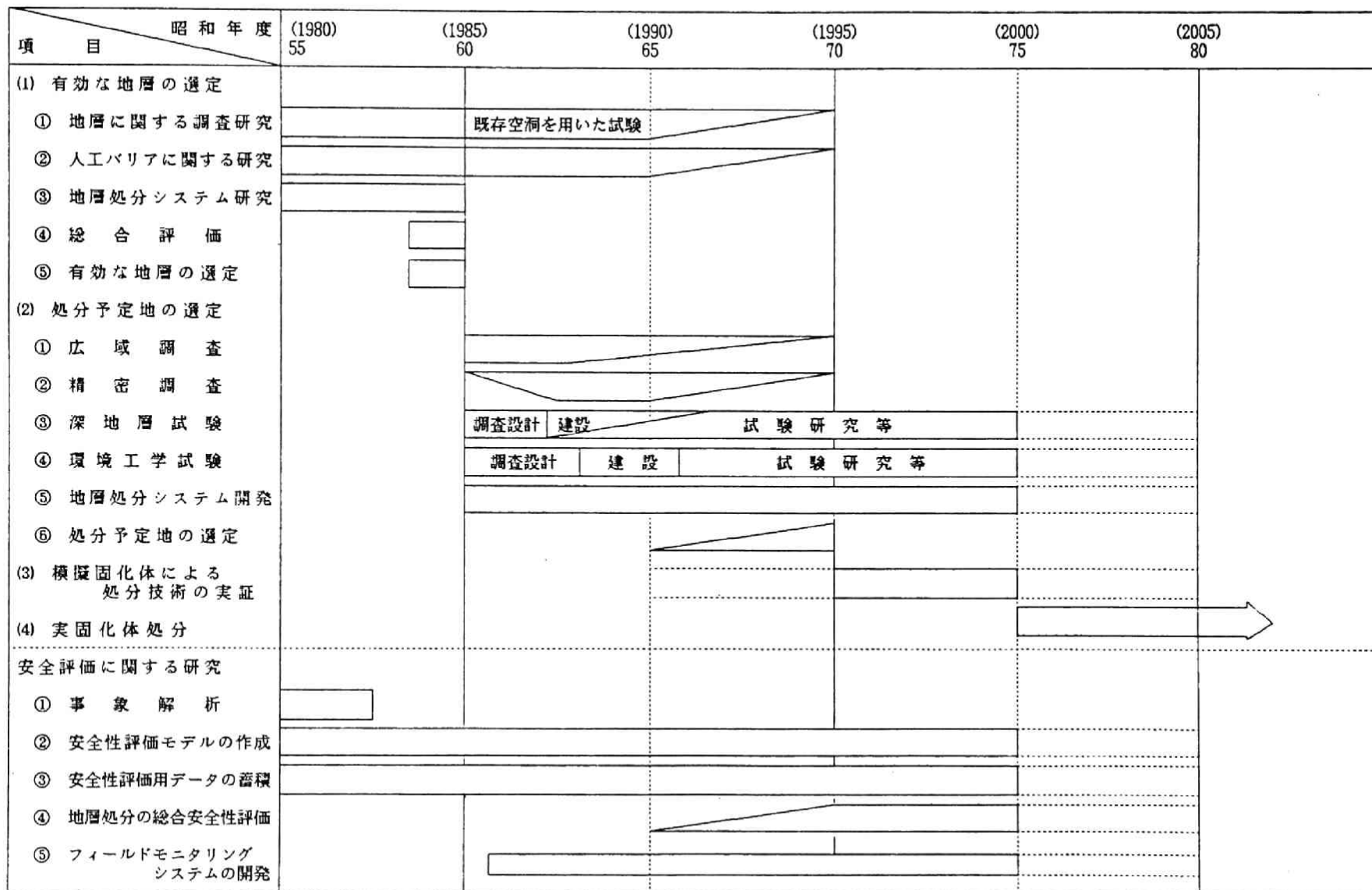
表 1-4 放射性固体廃棄物の陸地処分に関する濃度上限値

含まれる放射性 核 種	日 本 (注1) (Ci/ton)	参 考	
		米 国 (注2) (Ci/m ³)	仏 国 (注3) (Ci/ton)
⁶⁰ Co	3×10^2	—	1.3×10^3
⁹⁰ Sr	2×10^0	7×10^3	2×10^1
¹³⁷ Cs	3×10^1	4.6×10^3	1.3×10^2
⁶³ Ni	3×10^1	7×10^2	—
¹⁴ C	1×10^0	8×10^0	—
α 核 種	3×10^{-2}	半減期5年を越える TRU核種： 1×10^{-1} Ci/t ²⁴¹ Pu： 3.5×10^0 Ci/t ²⁴² Cm： 2.0×10^1 Ci/t	1×10^{-1}

- (注1)：⁶⁰Coについては、処分場管理期間中において処分場周辺の一般公衆の被曝に最も大きく寄与すると考えられるスカイシャイン放射線による被曝線量をもとに上限値を設定。
- (注2)：
・10CFR Part 61に定められている基準。
・固化体を5m以深に埋設するか、500年間は偶発的侵入を防護できるバリアを設ける処分の場合の固化体一体当たりの上限値。
- (注3)：
・ラマンシェにおいて埋設する場合の濃度基準。
・固化体を埋設する場合の固化体一体当たりの上限値。
・α核種の濃度は300年後の値。

表 1-5 地層処分技術開発スケジュール

(文献(3)より引用)



(注) 斜線および破線はその間に研究等の開始又は終了がありうることを示す。

1.4 陸地処分場立地選定条件

低レベル放射性廃棄物の陸地処分場のサイト選定条件としては、IAEA（国際原子力機関）は、表1-6に示すような一応の目安を提示している⁽²⁵⁾。また森沢⁽²⁶⁾は、上記条件をさらに具体的に検討するために任意に処分場の地理的条件や地下水文・地球化学（物理化学）的条件を設定し含まれる種々のパラメータの変化が線量結果に与える寄与率を評価することよりサイト選定に際し検討すべき立地条件として表1-7の項目を上げている。

高レベル放射性廃棄物の地層処分場の立地選定条件としては、低レベルの場合ほど明確になっていない。検討されるべき項目としては、以下のものが上げられている⁽²⁷⁾。

- (1) 地質学的にきわめて安定している古い地層
- (2) 相対的に均一で、廃棄物を隔離するのに十分に深く、十分に大きな広がりを持つ地層
- (3) 廃棄物と地下水の接触が容易に起るような亀裂や構造上の欠陥の少ない地層
- (4) 地下水の移動が小さく、しかも周辺の地下水文学的情報が十分に得られる地層
- (5) 仮に地下水の流入が起ったとしても、放射性物質の移動を遅らせるに十分な吸着容量を持った地層
- (6) 将来開発される有用鉱物資源を含まない地層
- (7) 現在の鉱山技術でも十分に地下構造物の構築可能な地層

我国の場合、陸地処分場を選定する際考慮すべきその地理的条件、地質条件、気候条件や社会環境条件は、どれをとっても必ずしも恵まれていないのが実情で、その選定に当っては厳しく検討する必要がある。しかしながら、現在進行中の低レベル放射性廃棄物の陸地処分場の建設に当っては、地理的条件の検討はあったものの、事前にサイト自体の水文地質・地球科学的条件の検討は必ずしも十分に実施されなかった経緯がある。このような状況を考慮すると、与えられたサイト条件の中での陸地処分の成立性を検討するためには現実に則した精度の良い安全評価手法の開発研究が今後ますます必要となる。

1.5 本研究の目的

放射性廃棄物陸地処分の成立の鍵を握るとも言える合理的な安全評価手法の確立のためには、環境へ放出された放射性核種の物理・化学的挙動とその運命（fate）について室内・フィールド研究を通じ正確に把握する必要がある。しかしながら、陸地処分の際に研究の中心となる地中での核種移動に関しては研究そのものが遅れていた。中でも通気層におけ

表 1-6 各種放射性廃棄物の陸地処分のための条件

(文献(25)より引用)

放射性廃棄物 陸地処分法	低レベル廃棄物		α 汚染廃棄物		高レベル廃棄物
	低レベル β/γ ごく微量の α (短寿命)	中レベル β/γ ごく微量の α (短寿命)	低レベル β/γ 相当量の α (長寿命)	中レベル β/γ 相当量の α (長寿命)	高レベル β/γ 相当量の α (長寿命)
浅層埋没	乾いた土地に	固化するか容器に入れて	よ く な い		よ く な い
	湿った土地に	固化するか容器に入れてさらに工学バリアを	よ く な い		よ く な い
空洞処分	乾いた土地に	容器に入れて*	状 況 に よ り 可 能		よ く な い
	湿った土地に	固化して容器に入れて*	よ く な い		よ く な い
深地層処分	乾いた土地に	適用できるが一般にここまですることは不要*	固化して容器に入れて		固化して容器に入れて除熱のため間隔をあけて
	湿った土地に	適用できるが一般にここまですることは不要*	固化して容器に入れてさらに工学バリアを		固化して容器に入れて除熱のため間隔をあけてさらに工学バリアを
液体の地中注入処分	適当な技術により適用できる。		実証技術と核種によっては可能		よ く な い

注) * 浅層の土地の条件のよくない所では好ましい方法。

表 1-7 陸地処分場として望ましい立地条件

(文献(26)より引用)

A. 地理的条件
1. 処分場から灌漑用地下水採取井戸までの距離が大きい。 2. 処分場から飲料用地下水採取井戸までの距離が大きい。 3. 公共水域(海、湖、川等)までの距離が大きい。 4. 地下水位が深い。
B. 物理化学的条件
1. 地下水の流速が小さい。 2. 放射性核種の分配係数値が大きい。 (地下水中の陽イオン濃度が小さい) 3. 地層の空隙率が小さい。 4. 帯水層の厚さが大きい。 5. 土壌の密度が大きい。
C. その他の条件
1. 降雨量が少ない。 2. 海での平均混合深さが大きい。

*これらの立地条件は、番号の若い順に優先されるべきである。

る核種移動の研究は、帯水層での研究に比べ著しく遅れていた。その主な原因は、通気層での水の移動が複雑であることを反映している。現在でも、通気層(不飽和層)の水の移動については、(i)大間隙説⁽²⁹⁾、(ii)圧力伝播説⁽²⁹⁾、(iii)拡張 Darcy説⁽³⁰⁾、(iv)非 Darcy説⁽³¹⁾、など諸説があってまだ統一した見解が得られていない。また、陸

地処分の先進国であった米国等では、帯水層を対象とした処分が研究の主流であったことから通気層でのデータの収集特にフィールドでのデータが不足するなど現象の把握が遅れていたことも原因の一つである。しかしながら、通気層を含め浅層地中環境は、多くの場合、人間の生産活動の場であることから、放出された放射性核種が人間へフィードバックされ易い最も身近な環境の一つであると言える。このような観点から、通気層での核種移動について研究を推進することは、陸地処分の安全評価の精度向上のみならず環境へ放出された核種の運命と、それらと我々人間との係わりを知る上で重要なことと思われる。

本研究の目的は、

- ① 通気層を含む浅層地中*での土中水の移動と放射性核種の移動についてフィールド調査および室内実験を行ない、浅層地中における核種移行において最も重要となる 卓越的な現象の把握を行う、
 - ② 陸地処分の安全評価のための評価手法の提示を行う、
- ことである。

本研究は、5章より構成される。第1章では、陸地処分の安全評価の際には通気層（浅層地中）での核種移動について正確な現象の把握に努めることが必要であることと、陸地処分の安全評価手法の提示の必要性について述べた。第2章では、通気層での核種移動の研究の流れと現状について述べると共に、天然に存在するフォールアウト核種の地中での分布調査を基に フィールド条件の下での降水浸透および ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 $^{239+240}\text{Pu}$ の移動の実態を明らかにする。第3章では、核種と土壌あるいは底質との吸着に際し環境条件の及ぼす影響と核種の存在形態について室内およびフィールド実験を基に述べる。第4章では、陸地処分の安全評価を行う際に必要な評価手法について提示すると共に、現在検討されている処分シナリオに従った任意処分条件の下で安全性の試算を行った結果について述べる。最後に第5章では、本研究で得られた成果を整理・要約すると共に、今後解決すべき問題点を整理する。

* 浅層地中：地表より10m程度で主に通気層であるが、浅い地下水（自由地下水）層を持つ帯水層の一部も含む範囲を考える。

参考文献

- (1) 朝日新聞 1987年2月17日 (夕刊)
- (2) 「世界の原発、2億kw台へ」1985、原子力工業 第31巻 第5号、7～10.
- (3) 原子力委員会 放射性廃棄物対策専門部会、1984、「放射性廃棄物処理処分方策について」(中間報告) 昭和59年8月7日 原子力委員会月報 Vol.29, No8, 5-19.
- (4) Devell L., Tovedal H., Bergstrom U., Appelgren A., Chyssler J. and Andersson L., 1986, "Initial observations of fallout from the reactor accident at Chernobyl", Nature, Vol. 321, 192-193.
- (5) Fry F. A., Clarke R. H. and O'Riordan M. C., 1986, "Early estimates of UK radiation doses from the Chernobyl reactor", Nature, Vol. 321, 193-195.
- (6) Pringle D. M., Vermeer W. J. and Allen K. W., 1986, "Gamma-ray spectrum of Chernobyl fallout", Nature, Vol. 321, 569.
- (7) Hill C. R., Adam I., Anderson W., Ott R. J. and Sowby F. D., 1986, "Iodine-131 in human thyroids in Britain following Chernobyl", Nature, Vol. 321, 655-666.
- (8) 市川龍資、1987, "チェルノブイリ原子力発電所事故の環境と人体への影響". 日本原子力学会誌、Vol. 29, 15-17
- (9) Thomas A. J. and Martin J. M., 1986, "First assessment of Chernobyl radioactive plume over Paris", Nature, Vol. 321, 817-819.
- (10) Aoyama M., Hirose K., Suzuki Y., Inoue H. and Sugimura Y., 1986, "High level radioactive nuclides in Japan in May", Nature, Vol.321, 819-820.
- (11) 市川龍資、1984, "海洋環境への放射性廃棄物処分の管理 - IAEA Safety Series

- Na61 に至るまで” 日本原子力学会誌、Vol. 26, 762-767.
- (12) Hollister C. D., Anderson D. R. and Health G. R., 1981, “Subseabed disposal of Nuclear Wastes”, Science, Vol. 213, 1321-1326.
- (13) OECD/NEA : 1984, “Seabed disposal of high level radioactive wastes status report on the NEA co-ordinated research program.”
- (14) 天沼 倂, 1985, “高レベル放射性廃棄物対策の現状 (2) - 深地層実験施設と深海洋底下処分” 原子力工業, 第31巻, 45-57.
- (15) 中村治人, 1979, “再処理高レベル廃液の群分離” 日本原子力学会誌, Vol. 21, 293-297.
- (16) Mackay J. S., 1973, “An evaluation of some special Techniques for Nuclear Waste disposal in Space” NASA Technical Memorandum, NASA-TM-X-62272.
- (17) 井上頼輝, 1970, “放射性廃棄物の地中処分に関する基礎的研究” 京都大学学位論文
- (18) Neretnieks I., 1980, “Diffusion in the Rock Matrix : An important factor in radionuclide retardation ?”, J. Geophys. Res., Vol. 85, B8, 4379-4397.
- (19) 石原健彦 1985, “海外における低レベル放射性廃棄物の陸地処分” 日本原子力学会誌, Vol. 27, 1008-1015.
- (20) 阪田貞弘, 1986, “低レベル放射性廃棄物の処分-ヨーロッパの実状” 原子力工業, 第32巻, 21-27.
- (21) 馬原保典 ; 1981, “カナダにおける放射性廃棄物処分および関連研究の現状” 日本原子力学会誌, Vol. 23, 251-258.
- (22) 永倉 正 ; 1986, “高レベル廃棄物処分の各国の現状と動向” 原子力工業, 第32巻, 12-15.

- (23) 原子力委員会，1980，“低レベル放射性廃棄物試験投棄について”原子力委員会月報 Vol.25, No.8, 19-20.
- (24) 科学技術庁原子力局原子力安全局監修，1987，原子力関係法規集「核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律施行令」，351-381，(大成出版社)
- (25) I A E A：1981，“Underground disposal of radioactive Waste basic guidance”
I A E A - Safety - Series No.54
- (26) 森沢真輔；1977，“放射性廃棄物地中処分場の立地選定に関する工学的研究”京都大学学位論文
- (27) Angino E. E., 1977, “High-level and long-lived radioactive waste disposal” Science, Vol. 198, 885-890.
- (28) 平田重夫；1971，“本郷台，白山における不圧地下水の涵養機構”地理学評論，Vol. 44, 14-46.
- (29) Anderson L. J. and Sevel T., 1974, “Six years' environmental tritium profiles in the unsaturated and saturated zones, Gronhoj, Denmark”, Proc. Symp. Isotope Technique in Groundwater Hydrology, IAEA-S M-182/1.
- (30) 土壌物理研究会編，1979，“土の物理学 第9章 水分移動”，239-278，森北出版(株)
- (31) 木村重彦；1971，“水中のトリチウムによる地下水の流れの研究(1)”，農業土木試験場報告 第9号，1-46.

第2章 通気層における放射性核種の移動に関する研究

2.1 概説

放射性廃棄物の陸地処分を実現するには、あらかじめ処分の安全評価を実施する必要がある。そのためには、処分施設より漏洩した核種を最初に受け取る環境媒体である地中での移動経路、移動速度を評価する必要がある。その際、特に漏洩核種と人間の生産活動による接触が、地下浅層を通じて起こる可能性が高いことを考慮すると、安全評価の精度を上げるためには、地下浅層とりわけ浅層地下水面と地表面との間に存在する通気層での核種移動を検討することが重要となってくる。

通気層における核種移動に関する研究は、帯水層における研究に比べ少なからず遅れている。その主な原因は、通気層における核種移動の起動力となる水の流れは、不飽和浸透流を主体とするきわめて複雑な現象であるために十分にその流動機構が解明されていないこと及び核種移動における遅延効果の根幹をなす核種吸着現象における土中気相の係わり等が明らかにされていない点等にある。

ここでは、2.2 において過去に行われた通気層での核種移動の理論的研究について整理した。また、2.3 では通気層におけるフォールアウト核種の移動について行ったフィールド研究に関し述べる。

2.2 通気層における放射性核種の移動に関する理論

2.2.1 帯水層での井上理論の通気層への拡張

井上⁽¹⁾は、次の仮定

- (1) 地下水の流線網は時間によらず一定である、
- (2) 地下水の拡散(分散)とこれに伴う放射性核種の拡散(分散)とは等しい、

の基に放射性核種の帯水層における物質収支式として次式を用いた。

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left\{ C + \frac{1-f}{f} \rho_q \right\} = & \frac{\partial}{\partial x} \left(D_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(D_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(D_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) \\ & - \frac{\partial}{\partial x} (V_x C) - \frac{\partial}{\partial y} (V_y C) - \frac{\partial}{\partial z} (V_z C) \end{aligned} \quad \dots\dots\dots (2-1)$$

ここに、 C, q : 各々放射性核種の地下水、土壌中濃度
 f : 地層の空隙率

ρ : 地層を構成する土壌の密度

D_x, D_y, D_z : 放射性核種、地下水の x, y, z 方向の拡散係数

V_x, V_y, V_z : 地下水の x, y, z 方向の流速

この式は、単位体積の帯水層内での放射性核種量の時間的変化の割合が、拡散項と水理学的輸送項によって与えられることを示したもので、放射性核種の自己崩壊の効果は無視されている。井上は、地中での地下水の流れは、一般に、極めて遅いので、地下水中の放射性核種と土壌中の放射性核種とは常に平衡状態にあると考え、核種吸着量を次式

$$q = kdC \quad \dots\dots\dots (2-2)$$

ここに、 K_d ; 放射性核種の地下水（液相）と土壌（固相）間の分配係数
で評価し、さらに、分配係数が時間的に変化しないものと考え、式（2-2）を式（2-1）に代入し、次の時間に関する変数変換

$$t = \left\{ 1 + \frac{1-f}{f} \rho kd \right\} T \quad \dots\dots\dots (2-3)$$

ここに、 T : 地下水の移動を測る時間スケール

t : 放射性核種の移動を測る時間スケール

を施して、帯水層での核種移動の支配方程式として、次式

$$\frac{\partial C}{\partial T} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(D_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(D_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) - \frac{\partial}{\partial x} (V_x C) - \frac{\partial}{\partial y} (V_y C) - \frac{\partial}{\partial z} (V_z C) \quad \dots\dots\dots (2-4)$$

を導いた。式(2-4)は、式(2-1)～式(2-3)において $kd=0$ 即ち、放射性核種が土壌に吸着されないと考えた場合の式と一致する。このことは、数学的には地下水そのものの移動を記述する基礎式が放射性核種の移動を記述する基礎式と時間軸について相似であることを意味する。井上は、その新・旧時間の変化比 t/T を K_f *値と呼んでいる。

* K_f 値は、2章後半の(2-51)式あるいは3章(3-3)式で表わされる遅延係数(Retardation Factor)と式の上では同等のものである。ただし、遅延係数の中には、 K_f 値が元来持つような数学的な時間変換という概念は含まれておらず、単に遅れを表わす係数として使われている。したがって、時間変換という意味を含まない場合には、遅延係数を用いることにする。

$$K_f = 1 + \frac{1-f}{f} \rho_{kd} \dots\dots\dots (2-5)$$

井上の理論は、特殊な場合を除き、解析的には解くことが出来ない基礎式を解く代りに、適当なトレーサー例えば三重水素水、色素等を用いて地下水そのものの地下帯水層での挙動を把握し、その時間軸を式(2-3)によって読み換えることにより、放射性核種の挙動を知る理論であると言える。

井上、赤木⁽²⁾は、帯水層において展開された井上の理論を通気層へ拡張するために、新たに次の仮定をした。

(3) 地層間隙の地下水による飽和度は時間的・空間的に一定であるとみなせる。
この仮定は、我国のように比較的湿潤な地域で均質な地層条件の下では、数多くのフィールド観測によって土壌水分は、降雨時であってもほぼ一定であるという結果からもきわめて妥当な仮定であると言える。井上、赤木はこの仮定の下に放射性物質の地中での物質収支式を記述し、通気層においては帯水層におけるKf値、式(2-5)に代わる時間変換比として次式、

$$K_{fu} = 1 + \frac{1-f}{f_s} \rho_{kd} \dots\dots\dots (2-6)$$

で定められる通気層におけるKf値、Kfuを用いればよいことを示した。ここに、sは地層間隙体積中に占める土壌水分の体積の容積比率で表わされる地層間隙の飽和度である。式(2-6)で用いるKd値は飽和土壌カラムを用いて測定した分配係数である。

2.2.2 不飽和浸透理論を基礎とした通気層での核種移動理論

土壌間隙内を不飽和状態で水が移動する場合の起動力は、水と土壌粒子との間に働く化学エネルギーの総和としての吸引力（負圧）である。その大きさを、毛管ポテンシャル ψ で表わすものとする。Buckingham⁽³⁾は、土壌単位断面積当りの水分移動のフラックスの大きさを次式で定義した。

$$q = -k \nabla \psi \dots\dots\dots (2-7)$$

ここに、 q ；水分のフラックス

k ；不飽和透水係数

ψ ；毛管ポテンシャル

この水分フラックス q を用いて、土壌内での水分の保存式を考えると不飽和浸透式

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = \nabla \cdot (D(\theta) \cdot \nabla \theta) - \frac{dk(\theta)}{d\theta} \cdot \frac{\partial \theta}{\partial z} \quad \dots\dots\dots (2-8)$$

ここに θ ；体積含水率 (Wvol/Svol * ; * : Bulk Soil Volume)

$$D(\theta) = k \frac{\partial \psi}{\partial \theta} \quad \dots\dots\dots (2-9)$$

が得られる。(2-9) 式で与えられる $D(\theta)$ は、土壌水分拡散係数 (Soil Water Diffusivity) とよばれるものであり、 θ の大きさによって変化するものであるが、一般には、 $D(\theta)$ は θ の関数で与えられる。また(2-8) 式の中では、ヒステリシス現象は考慮されていない。

土壌に吸着される核種の吸着量の評価方法としては、土壌をイオン交換体と考え、土壌と核種との間の交換平衡の関係から求めた分配係数(k_d)を用いてヘンリー型*の吸着式によって評価する方法が核種の地中移動現象においては多く採用される。それによる吸着量 $q(\mu Ci/g)$ は

$$q = k_d \cdot C \quad \dots\dots\dots (2-10)$$

ここに、 C ：液中核種濃度 ($\mu Ci/ml$) で与えられる。

不飽和浸透式およびヘンリー型吸着式を組合せて通気層での核種移動の基礎方程式は次式

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\theta \cdot C + \rho \cdot k_d C) &= \frac{\partial}{\partial x} (C \cdot D(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y} (C \cdot D(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial y}) \\ &+ \frac{\partial}{\partial z} (C \cdot D(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial z}) - \frac{\partial}{\partial z} (k(\theta) \cdot C) \\ &+ \frac{\partial}{\partial x} (\theta \cdot D_x \frac{\partial C}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y} (\theta \cdot D_y \frac{\partial C}{\partial y}) \\ &+ \frac{\partial}{\partial x} (\theta \cdot D_z \frac{\partial C}{\partial z}) - \frac{0.693}{T^{1/2}} (\theta \cdot C + \rho \cdot k_d C) \end{aligned} \quad \dots\dots\dots (2-11)$$

* ヘンリー型吸着式は、フレンドリッヒ型吸着式 $q = d C^n$ において $n = 1$ の場合である。(d = 定数、 C = 核種の液中濃度)

ここに、 ρ ; みかけの土壌密度 (g/cm³)
 C ; 土中水中核種濃度 (μ Ci/ml)
 D_x, D_y, D_z ; 各々 x, y, z 方向の放射性核種の濃度勾配を起動力とする拡散係数 (cm²/sec)
 $T_{1/2}$; 放射性核種の半減期 (sec)
 で与えられる。

2.2.3 通気層・帯水層を包括した地中での核種移動理論

通気層での水の移動を体積含水率 θ で表現すると、飽和・不飽和領域を連続して取扱うことが困難となる。YehとWord⁽⁴⁻⁵⁾は、水分量をエネルギー量(全水頭) H で表わすことにより連続的に取扱うことに成功した。その場合、地下水の流れは次式で表わされる。

$$\begin{aligned}
 F \frac{\partial h}{\partial t} &= \nabla \cdot [\overline{K} \nabla (h+z)] + Q \\
 &= \frac{\partial}{\partial x} (K_r K_{xx}^s \frac{\partial H}{\partial x} + K_r K_{xy}^s \frac{\partial H}{\partial y} + K_r K_{xz}^s \frac{\partial H}{\partial z}) \\
 &\quad + \frac{\partial}{\partial y} (K_r K_{yx}^s \frac{\partial H}{\partial x} + K_r K_{yy}^s \frac{\partial H}{\partial y} + K_r K_{yz}^s \frac{\partial H}{\partial z}) \\
 &\quad + \frac{\partial}{\partial z} (K_r K_{zx}^s \frac{\partial H}{\partial x} + K_r K_{zy}^s \frac{\partial H}{\partial y} + K_r K_{zz}^s \frac{\partial H}{\partial z}) + Q \\
 &= \frac{\partial}{\partial x_i} (K_{ij} \frac{\partial H}{\partial x_j}) + Q \quad \dots\dots\dots (2-12)
 \end{aligned}$$

$$K_{ij} = K_r \cdot K_{ij}^s \quad \dots\dots\dots (2-13)$$

ここに、 H : 全水頭 (L)、 h : 圧力水頭 (L)、 Z : 位置水頭 (L)、 \overline{K} : 透水係数テンソル (L/T)、 F : 一般化された比貯留係数 (1/L)、 x_i : 距離座標成分 (L)、 K_{ij} : 不飽和透水係数成分 (L/T)、 K_r : 相対透水係数、

K_{ij}^s : 飽和透水係数成分 (L/T)、 Q : 系外からの涵養量 (正) あるいは揚水量 (負) (1/T) である。不飽和の場合、 F は次式(2-14) で与えられる。

$$F = \theta \cdot \rho_f \beta' + \frac{d\theta}{dh} + \frac{\theta}{n} d' \quad \dots\dots\dots (2-14)$$

ρ_f : 流体密度 (M/L³)、 n : 間隙率、 d' : 流体の修正圧縮係数

また、YenとWord⁽⁴⁻⁵⁾は核種輸送モデルに関する支配方程式として、次のような物質保存則に基づいて(2-22)式を導いた。

$$\begin{aligned} (\text{物質の蓄積速度}) = & (\text{移流in}-\text{移流out}) + (\text{分散in}-\text{分散out}) - (\text{放射性核種の崩壊}) \\ & - (\text{物理、化学、生物学的プロセスによる分解}) \end{aligned} \quad (2-15)$$

各項は次のように表わすことができる。

$$a. \quad (\text{物質の蓄積速度}) = \frac{\partial (\theta C + \rho_b S)}{\partial t} \quad (2-16)$$

C : 溶質濃度 $[M/L^3]$

S : 吸着量 $[M/M]$

θ : 体積含水率 $[L^3/L^3]$

ρ_b : 媒体(土壌)のみかけ密度 $[M/L^3]$

$$b. \quad (\text{移流in}-\text{移流out}) = -\nabla \cdot (\vec{V} C) - \nabla \cdot [(\theta C + \rho_b S) \vec{V}_s] \quad (2-17)$$

\vec{V} : 媒体に相対的なダルシー流速 $[L/T]$

\vec{V}_s : 圧密による媒体の変位速度 $[L/T]$

$$c. \quad (\text{分散in}-\text{分散out}) = \nabla \cdot (\theta \bar{D} \cdot \nabla C) \quad (2-18)$$

\bar{D} : (分散係数テンソル $[L^2/T]$)

$$\theta D_{ij} = a_T |\vec{V}| \delta_{ij} + (a_L - a_T) V_i V_j / |\vec{V}| + a_m T^* \delta_{ij} \theta$$

$$D_{ij} : \text{テンソル} \bar{D} \text{の成分} [L^2/T] \quad (2-19)$$

a_T : 流れに対して垂直方向の分散能 (dispersivity) $[L]$

a_L : 流れ方向の分散能 $[L]$

δ_{ij} : クロネッカーのデルタ

a_m : 分子拡散係数 $[L^2/T]$

T^* : 屈曲度 (tortuosity)

$$d. \quad (\text{放射性物質の崩壊}) = \lambda (\theta C + \rho_b S) \quad (2-20)$$

λ : 崩壊定数 $[1/T]$

$$e. \quad \left(\begin{array}{l} \text{物理、化学、生物学的} \\ \text{プロセスによる分解} \end{array} \right) = K_w \theta C + K_s \rho_b S \quad (2-21)$$

ここに、

K_w : 物理、化学、生物学的プロセスにより液相において分解する速度定数 (1/T)

K_s : 吸着相において分解する速度定数 (1/T)

式 (2-16)~(2-21) を式 (2-15) に代入すると、

$$\begin{aligned} \frac{\partial (\theta C + \rho_b S)}{\partial t} = & -\nabla \cdot (\vec{V} C) - \nabla \cdot [(\theta C + \rho_b S) \vec{V}_s] \\ & + \nabla \cdot (\theta \vec{D} \cdot \nabla C) - \lambda (\theta C + \rho_b S) V_s - (K_w \theta C + K_s \rho_b S) \end{aligned} \quad (2-22)$$

一方、

$$\begin{aligned} -\nabla \cdot [(\theta C + \rho_b S) \vec{V}_s] = & -(\theta C + \rho_b S) \nabla \cdot \vec{V}_s + \vec{V}_s \nabla \cdot [(\theta C + \rho_b S)] \\ \approx & -\alpha' \frac{\partial h}{\partial t} (\theta C + \rho_b S) \end{aligned} \quad (2-23)$$

および、核種吸着量は、吸着平衡が瞬時に成立するものと仮定し次式 (ヘンリー型吸着式) で表わした。

$$S = k_d C \quad (2-24)$$

ここに、 α' : 媒体の修正圧縮性係数 [1/T]

h : 圧力水頭 [L]

k_d : 分配係数 [L³/M]

であり、これを式 (2-24) に代入し、若干の変形を施すことにより、飽和・不飽和領域を包括する核種輸送に関する支配方程式として次式を得る。

$$\begin{aligned} & (\theta + \rho_b K_d) \frac{\partial C}{\partial t} + C \frac{\partial \theta}{\partial t} + \left[\frac{\partial}{\partial x} (V_x C) + \frac{\partial}{\partial y} (V_y C) + \frac{\partial}{\partial z} (V_z C) \right] \\ & + \alpha' (\theta + \rho_b K_d) \frac{\partial h}{\partial t} C - \frac{\partial}{\partial x} \left[\theta D_{xx} \frac{\partial C}{\partial x} + \theta D_{xy} \frac{\partial C}{\partial y} + \theta D_{xz} \frac{\partial C}{\partial z} \right] \\ & - \frac{\partial}{\partial y} \left[\theta D_{yx} \frac{\partial C}{\partial x} + \theta D_{yy} \frac{\partial C}{\partial y} + \theta D_{yz} \frac{\partial C}{\partial z} \right] \\ & - \frac{\partial}{\partial z} \left[\theta D_{zx} \frac{\partial C}{\partial x} + \theta D_{zy} \frac{\partial C}{\partial y} + \theta D_{zz} \frac{\partial C}{\partial z} \right] \\ & + \lambda (\theta + \rho_b k_d) C + (K_w \theta + K_s \rho_b k_d) C - M \\ = & (\theta + \rho_b k_d) \frac{\partial C}{\partial t} + C \frac{\partial \theta}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (V_i C) + \alpha' (\theta + \rho_b k_d) \frac{\partial h}{\partial t} C \\ & - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\theta D_{ij} \frac{\partial C}{\partial x_j} \right) + \lambda (\theta + \rho_b k_d) C + (K_w \theta + K_s \rho_b k_d) C - M = 0 \end{aligned} \quad (2-25)$$

V_x, V_y, V_z : ダルシー流速ベクトルの x, y, z 方向成分 (L/T)

$D_{xx}, D_{xy}, D_{xz}, D_{yx}, D_{yy}, D_{yz}, D_{zx}, D_{zy}, D_{zz}$: 分散係数テンソル成分 (L^2/T)

M : 人工的に系へ投入される物質ソースの量 ($M/L^3/T$)

(2-25)式は、本質的には、(2-11)式となんら変るところがない。

2.2.4 通気層での核種移動の理論に関する最近の動向

不飽和状態（通気層）での核種の地中移動では、一般に“テーリング (tailing) 現象”が観測される。Genuchten 等は⁽⁶⁾は、このテーリング現象を多孔体内の不動水 (immobile water) あるいは停留水 (stagnant water) 帯内部への溶質 (放射性核種) の拡散によって説明している。また不飽和状態では、土壌水分量に伴い不動水帯の増加がテーリングを増大させるとも説明している。Genuchten⁽⁶⁾は、Coats and Smith⁽⁷⁾と Deans⁽⁸⁾が提案した易動水 (mobile water) と不動水モデルを基に、不飽和層内での溶質輸送モデルとして2成分流れモデルを提案した。その後多くの研究者によって2層流モデルに関する研究成果が報告されている⁽⁹⁻¹²⁾。我国においては、土壌水の易動性を基にさらに細かに分類し急流水 (rapidly mobile water)、緩流水 (moderately mobile water)、不動水 (immobile water) の3成分に分けた3成分流モデルが森沢等⁽¹³⁾によって提案されている。それによれば、不動水領域では、

$$\frac{\partial}{\partial t} \{ \theta_{im} C_{im} + \eta_{im}(1-f)\rho q_{im} \} = \alpha (C_m - C_{im}) \quad \dots\dots\dots (2-26)$$

緩流水領域では、

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \{ \theta_m C_m + \eta_m(1-f)\rho q_m \} &= \frac{\partial}{\partial Z} \left(\theta_m D_m \frac{\partial C_m}{\partial Z} \right) \\ &- \frac{\partial}{\partial Z} (\theta_m V_m C_m) - \alpha (C_m - C_{im}) + \beta (C_r - C_m) \quad \dots\dots\dots (2-27) \end{aligned}$$

急流水領域では、

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \{ \theta_r C_r + \eta_r(1-f)\rho q_r \} &= \frac{\partial}{\partial Z} \left(\theta_r D_r \frac{\partial C_r}{\partial Z} \right) \\ &- \frac{\partial}{\partial Z} \{ \theta_r V_r C_r \} - \beta (C_r - C_m) \quad \dots\dots\dots (2-28) \end{aligned}$$

また、土壌と核種の吸着反応は次のヘンリー型を仮定している。

$$q_i = k d_i C_i \quad (i = im, m, r) \quad \dots\dots\dots (2-29)$$

さらに、堀内等⁽¹⁴⁾は、3成分流モデルと種々の吸着モデルを組合せた場合についても検討を行っている。

このように流れの成分を単成分から多成分へ細分化することにより通気層での核種移動のモデルは、精密となり現象をより正確にシミュレートできるようになった。しかしながら、その反面モデルは、数多くのパラメータを含むことによってその物理的な意味がきわめて曖昧となり、個々のパラメータを独立に設定することがきわめて困難となる。陸地処分の安全評価においては、核種の移行を評価する複数の環境媒体サブモデルが組合わされて全体的な評価が実施されるが、その際各々のモデル間の精粗の度合いについて統一を計る必要がある。このことは、地中移行のモデルのみを詳細複雑化することは被曝線量評価までを含めた最終結果の精度を考えると労力の割にはあまり意味のあることではない。また、現実の評価に際しモデル中に含まれる物理的な意味を含まない流れに関するパラメータの測定は、フィールドの中では直接的に困難である。これらの点を考慮すると陸地処分の安全評価のためには、地中での核種移動モデルとしては、出来る限りシンプルであることが望ましい。

2.3 通気層でのフォールアウト核種の移動に関するフィールド研究

2.3.1 研究の背景と目的

通気層を対象とした浅層地中での放射性核種の挙動については、すでに2.2で述べたように理論的研究ならびに室内実験研究の事例は数多くある⁽²⁻¹⁴⁾。しかし、自然環境下での放射性核種の地中移動の研究は、処分場からの漏洩放射性核種のモニタリングの事例はある⁽¹⁵⁻¹⁶⁾が、放射性物質を使った研究のためのフィールド実験は、ほとんど実施されていない。特に我国においては、法による規制が厳しいので排水に係わる許容濃度を超える濃度の放射性物質を用いた研究は皆無というのが現状である。したがって、浅層地中での放射性核種の移動・挙動の実態が十分に把握しきれていないと言難い。

自然環境中での放射性核種の挙動について研究する際に、実際に放射性物質を使ったフィールドでのトレーサー実験の実施は前述したように法による規制のためにきわめて困難な状況にある。新たに放射性物質を用いたフィールド実験を行わずして、フィールドでの放射性核種移動について情報を得る方法について検討する場合に、まず最初に考えつくの

は、核実験等によって環境中に放出されたフォールアウト核種の活用を計ることである。

フォールアウト核種の活用という点では、フォールアウト核種を環境内での1つのトレーサーとして地球規模での物質大循環（大気循環、海水循環）、湖沼等での堆積速度の推定、農耕地の浸食割合や地下水流動調査に適用された例は数多くある⁽¹⁷⁻²⁶⁾。しかしながら、陸地処分の安全評価実施のためのパラメータの収集や地中での核種移行機構の調査の目的に活用された例はまだ報告されていない。それは、実際に活用できる核種が、半減期等の制約によって ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{241}Am (^{237}Np) 等に限られることおよびそれら放射性核種の化学形態が不明確な点にあると思われる。しかし、前記の放射性核種は、すべて放射性廃棄物の陸地処分（浅層地中処分および深層地層処分）の安全評価上は、決定核種ともなりうる重要な放射性核種であること、およびフィールドにおいて、これら放射性核種を直接トレーサーとして用いた試験を行うことは現状では不可能であることを考慮すると、これら核種の浅層地中環境内での挙動について検討する際にフォールアウトを活用することはきわめて有効であると言えよう。さらに、廃棄物に含まれる放射性核種の化学形態自体が不明確であることを考慮すると、フォールアウト核種と廃棄物から環境中へ漏洩した核種の化学形態の若干の違いのために、地中での挙動が全く異なるものと考えするには、十分な根拠がないと言えよう。例えば、水圏環境中に放出された ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 化学形態は、それらのpH-Ehダイアグラム⁽²⁷⁾（図2-1～2-2）から考察すると、イオン状にあると考えるのが妥当である。また高レベル廃棄物の安全評価上重要なプルトニウムは、廃棄物中ではその多くがガラス固化体中に含まれている。ガラス固化体の製造過程では、例えばホウケイ酸ガラスの場合には、1100～1150℃で熔融される際に高レベル廃液中に含まれるアクチニド元素やF、Pは仮焼され酸化物として加えられることから、プルトニウムも酸化物の形でガラス SiO_2 の不規則網目構造中にとりこまれているものと考えられる⁽²⁸⁾。しかしながら、ガラス固化体中およびガラス固化体から溶出してくる核種の存在形態については、ほとんど研究が進展しておらず、存在形態そのものについてあまり議論がなされていないのが現状である。このような状況の下、現時点では直接放射性物質を環境に散布し、その挙動を観察することが困難であるので、陸地処分を対象とした環境条件下での放射性核種の地中移動の研究にフォールアウト核種の活用を計ることは、現時点では最良の方法の1つと考えられる。

ここでは、1945年の長崎原爆の際に放出されたフォールアウト核種が集中的に降下した

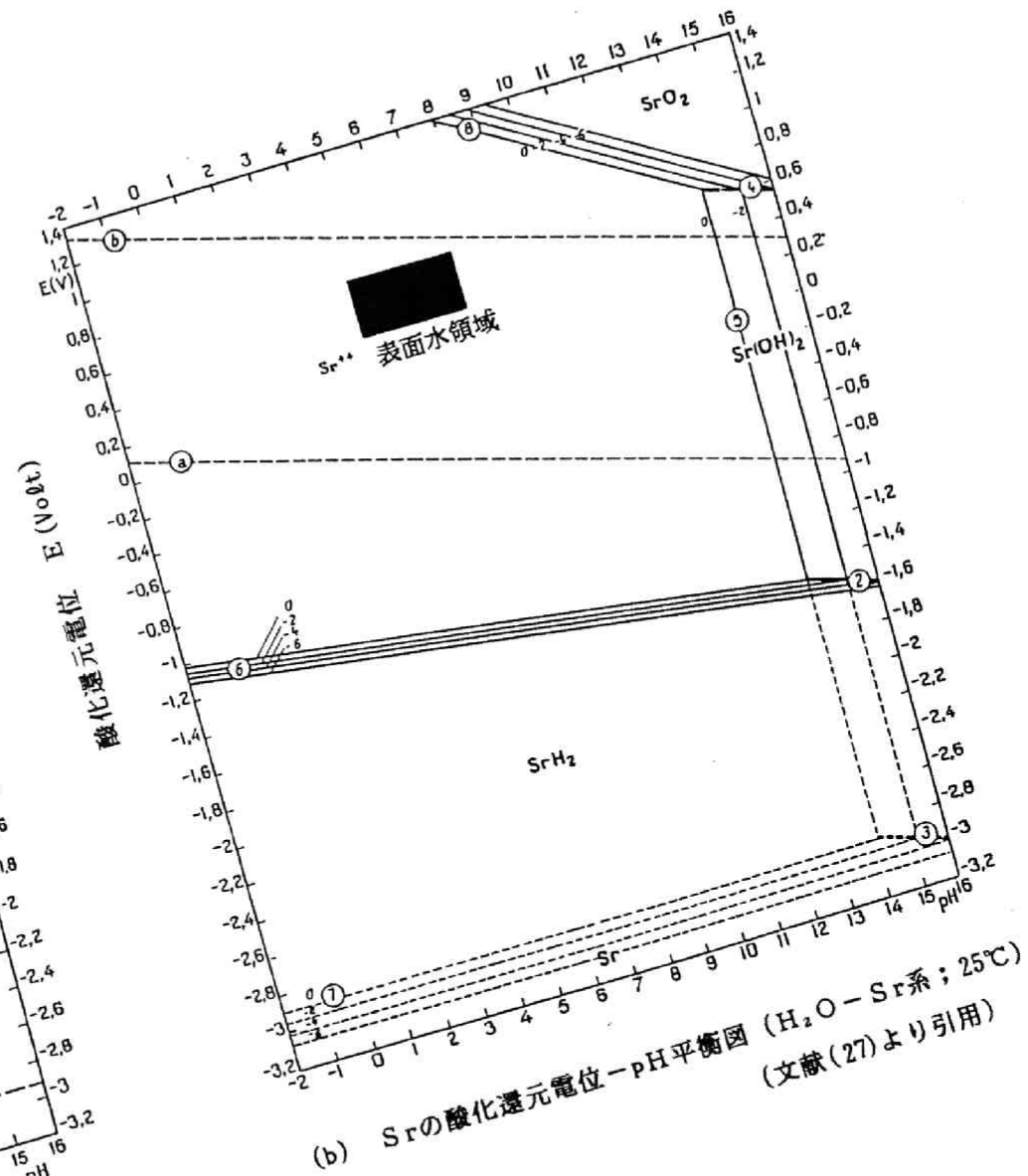
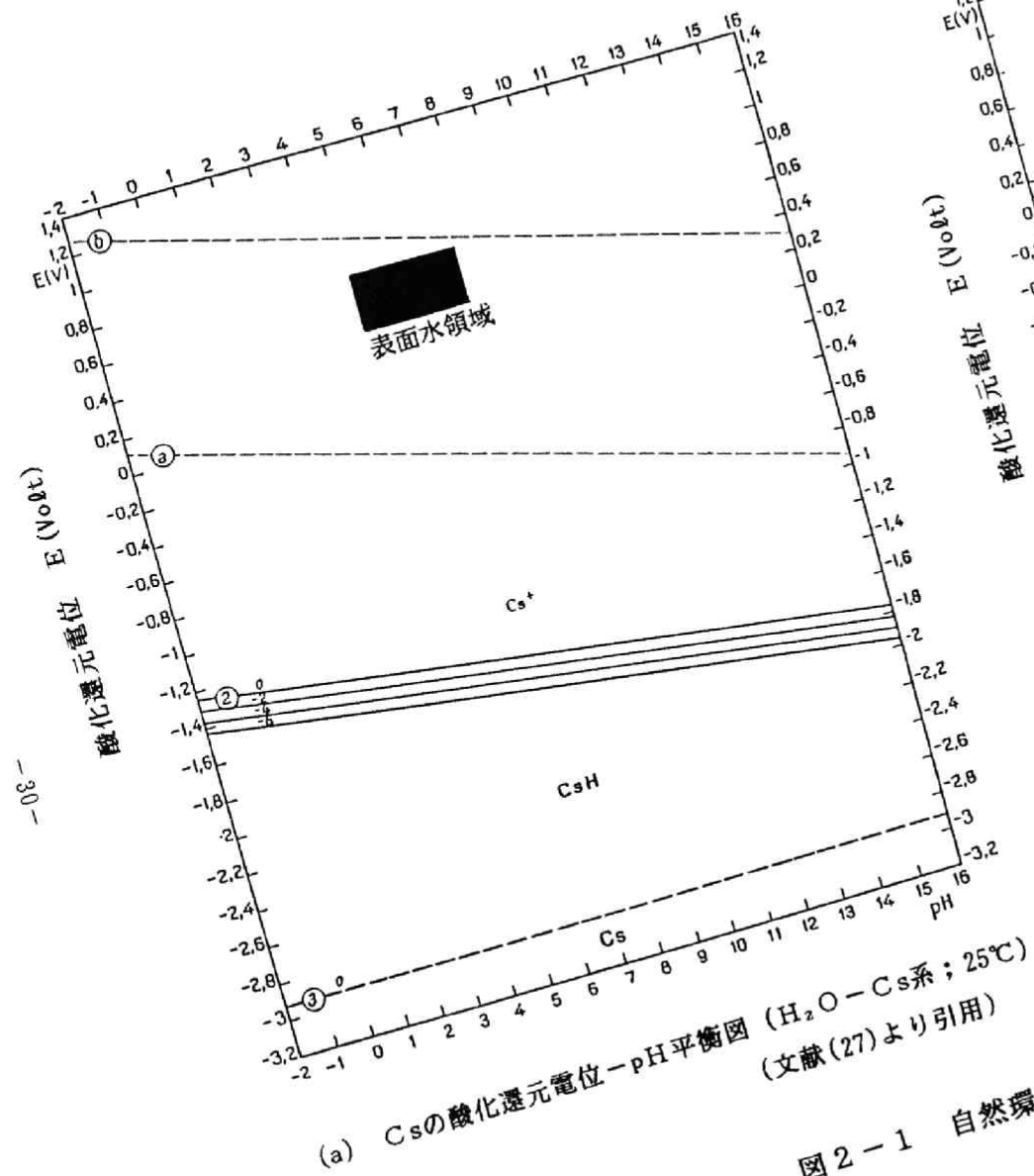


図 2-1 自然環境条件下でのCs, Srの存在状態



図 2-2 プルトニウム吸着濃度測定のための地表面土壌採取地点
および未攪乱土壌コア-NA, NB の採取地点

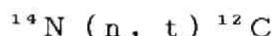
長崎市西山地区（図 2-2参照）においてフォールアウト核種の地中での分布実態を詳細に調査することにより、室内実験では十分に得られない自然環境条件下での長期にわたる地中での核種移動の実態について報告する。

2.3.2 実環境条件下（通気層）での降水の浸透

不飽和層内での降水の浸透について、Zimmermann⁽²⁹⁾の行ったトリチウム（HTO）および重水（D₂O）を用いた実験結果によれば地中に浸透した雨水は降水年代ごとに層をなして地下水面に向かって移動している可能性を示唆した。その後フィールド調査の結果採取した不飽和浸透水に含まれる天然のトリチウム濃度の測定により不飽和層の各深度における浸透降水の年代測定が可能となった。その結果降水の浸透速度はそれまで予測されていた浸透速度よりもかなり小さいこと、また通気層内での降水の浸透がピストン流として近似できる場合もあることが明らかとなった⁽³⁰⁾。

（1）環境トリチウムを利用した降水浸透解析手法の概要

トリチウムは、唯一の水素の放射性同位体であり、半減期 12.36年でβ崩壊（最大エネルギー18KeV）し安定元素³Heに変わる。自然界におけるその生成は、主に大気上層部での宇宙線による窒素元素Nの核反応



によると考えられている⁽³¹⁾。1946年 Libby⁽³²⁾は、天然トリチウム（HTO）が存在することを予言し、1952年に Kaufman⁽³³⁾等によって降水中に微量に存在することが確認された。このことから Libbyの予言が正しかったことおよび、大気上層で生成されたトリチウムが降水に混って地表水や地下水の循環経路に取込まれ混入したトリチウムを追跡することにより水循環機構解明のための指標物質として活用できることの原理的根拠を与えた。

降水のトリチウム濃度は、1952年以降1963年まで大気圏内核実験とともに増加し1963年にはピーク2000（TR*）に達しその後指数関数的に減少し現在では、バックグラウンド値10（TR）に戻りつつある⁽³⁴⁾。

* TR（トリチウム比）＝（トリチウム原子数／10¹⁸水素原子数）を表わす。1 TRのトリチウムを含む水のトリチウム濃度は25°（C）で3.20pCi/lとなる。

一般に降水は、降水起源の気団の違いにより一雨ごとに固有のトリチウム濃度を持っている⁽³⁵⁾。この違いを利用すれば、降水の垂直浸透解析が可能となる⁽³⁶⁾。また通気層内では、浸透した降水は分散の小さな栓流 (piston flow) として地中を浸透していると Munnich⁽³⁷⁾、Zimmermann⁽³⁸⁾、Schmalz⁽³⁹⁾ や 我国では木村⁽⁴⁰⁾等の研究の中で報告されている。このことは、逆に土中水のトリチウム濃度を測定すれば、降水の浸透速度が明らかになることを意味している。

梶根⁽⁴¹⁾ 嶋田⁽³⁰⁾ は、押出し流れモデル (Displacement Flow-Model) を用いて関東ローム層における降水の不飽和浸透を解析している。図2-3は、地表面付近における水の物質収支を表している。

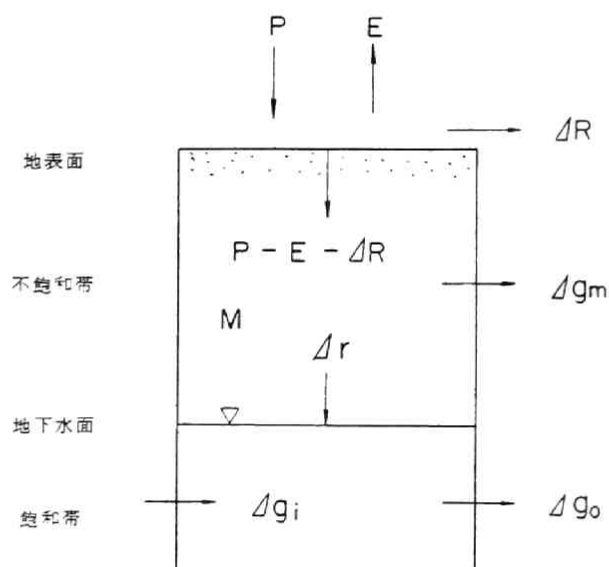


図 2-3 地表面付近の水の動き (文献(30)より引用)

P : 降水量 E : 蒸発散量

ΔR : 正味の表面流出

Δg_m : 正味の土壌水分流出量

Δg_i : 地下水流入量

Δr : 正味の地下水涵養量

Δg_o : 地下水流出量

地表が水平均質でかつ土壌の浸透能が大きく表面流出が生じない場合には、ある月 k の降水の浸透量 I_k は、(2-30) 式で表される。

$$I_k = P_k - E_k \quad \dots\dots\dots (2-30)$$

(2-30)式において P_k を観測し、 E_k を気象データを基に Penman⁽⁴³⁾ の蒸発散式

$$H_o = 0.95 R_A (0.18 + 0.55/N) - \sigma_s T_a^4 (0.56 - 0.09\sqrt{e_d}) (0.1 + 0.90n/N) \quad \dots\dots\dots (2-31)$$

$$E_a = 0.35 (0.5 + 0.01/U_2) (e_a - e_d) \quad \dots\dots\dots (2-32)$$

$$E_o = \left(\frac{4}{\gamma} H_o + E_a \right) / \left(\frac{4}{\gamma} + 1 \right) \quad \dots\dots\dots (2-33)$$

$$E_k = \xi \cdot E_o \quad \dots\dots\dots (2-34)$$

によって評価すれば、浸透量 I_k が推定される。

ここに R_A : 大気外可能最大日射量 (mm/day) N : 可照時間
 n : 日照時間 (h r) T_a : 平均気温 (°K)
 e_d : 大気中水蒸気圧 σ_s : Stefan定数 (mm/day)
 U_2 : 高さ 2 m での平均風速 (mile/day)
 e_a : 温度 T_a のときの飽和水蒸気圧 (mmHg)
 Δ : 飽和水蒸気圧曲線の勾配 (mmHg/K) γ : 乾湿計定数 (0.27 mmHg/°F)
 ξ : 蒸発比

を表わす。

毎月の降水量 P_k と蒸発量 E_k を基に浸透量 I_k を推定しさらに地層の空隙率 f_i 飽和度 S_i を実測すれば、地層の各深度における降水の有効浸透量 I_{ia} (あるいは浸透距離) は、

$$I_{ia} = I_k / f_i \cdot S_i \quad \dots\dots\dots (2-35)$$

で与えられる。ここでは、地層の飽和度は、地表面から 50cm 以深では年間を通じてほぼ一定で変化が少ないという実測結果⁽²²⁾を基に飽和度が時間的に変化しないと仮定した。

地層を地表面から深さ方向に単位長 ℓ ごとに n 個に分割すると i 番目の深度での単位断面の土壌柱に含まれる全水分量 W_i は

$$W_i = f_i \cdot S_i \cdot \ell \quad \dots\dots\dots (2-36)$$

で、地表面から深さ L までの土壌に含まれる全土中水量 M は、

$$M = \sum_{i=1}^n W_i = \sum_{i=1}^n f_i \cdot S_i \cdot \ell \quad \dots\dots\dots (2-37)$$

(但し、 $n = L/\ell$ とする)

で与えられる。

一方、現在から過去 t 時間までの全浸透量 I は

$$I = \sum_{m=1}^t I_m \quad \dots\dots\dots (2-38)$$

で与えられる (m は現在を起点とし、過去に逆って月を数える、例えば 3ヶ月前 $m=3$ となる)

ので、(2-37)式と(2-38)式より

$$I = \sum_{m=1}^t I_m = \sum_{i=1}^n f_i \cdot S_i \cdot \ell \quad \dots\dots\dots (2-39)$$

なる t を求めれば、 t 年間の降水が深さ L の地層中に層状に集積されていることになる。

各月ごとの降水の平均トリチウム濃度を C_m とすると、任意深さ (L_i) の単位長 ℓ の地層内に含まれる土水中トリチウム濃度 C_i は、

$$C_i = \frac{\alpha I_{m-1} \cdot C_{m-1} + I_m \cdot C_m + \dots\dots + \beta I_{m+r} \cdot C_{m+r}}{f_i \cdot S_i \cdot \ell} \quad \dots\dots\dots (2-40)$$

で与えられる。ただし、土壌コア $i-1$ と i にまたがる降水浸透量 I_{m-1} の土壌コア i に含まれる割合を α 、また、土壌コア i と $i+1$ にまたがる降水浸透量 I_{m+r} の土壌コア i に含まれる割合を β とすると、 α 、 β は次式によって与えられる。

$$\alpha = \left(\sum_{j=1}^{m-1} I_j - \sum_{j=1}^{i-1} (S_j \cdot f_j) \cdot \ell \right) / I_{m-1}$$

$$\beta = 1 - \left(\sum_{j=1}^{m+r} I_j - \sum_{j=1}^i (S_j \cdot f_j) \cdot \ell \right) / I_{m+r}$$

なお、 α 、 β および r の関係を図 2-4 に示す。

(2-40) 式で得られたトリチウム濃度を深さ方向にプロットすると押し出し流れモデルにより解析された土中水トリチウム鉛直濃度分布が得られる。

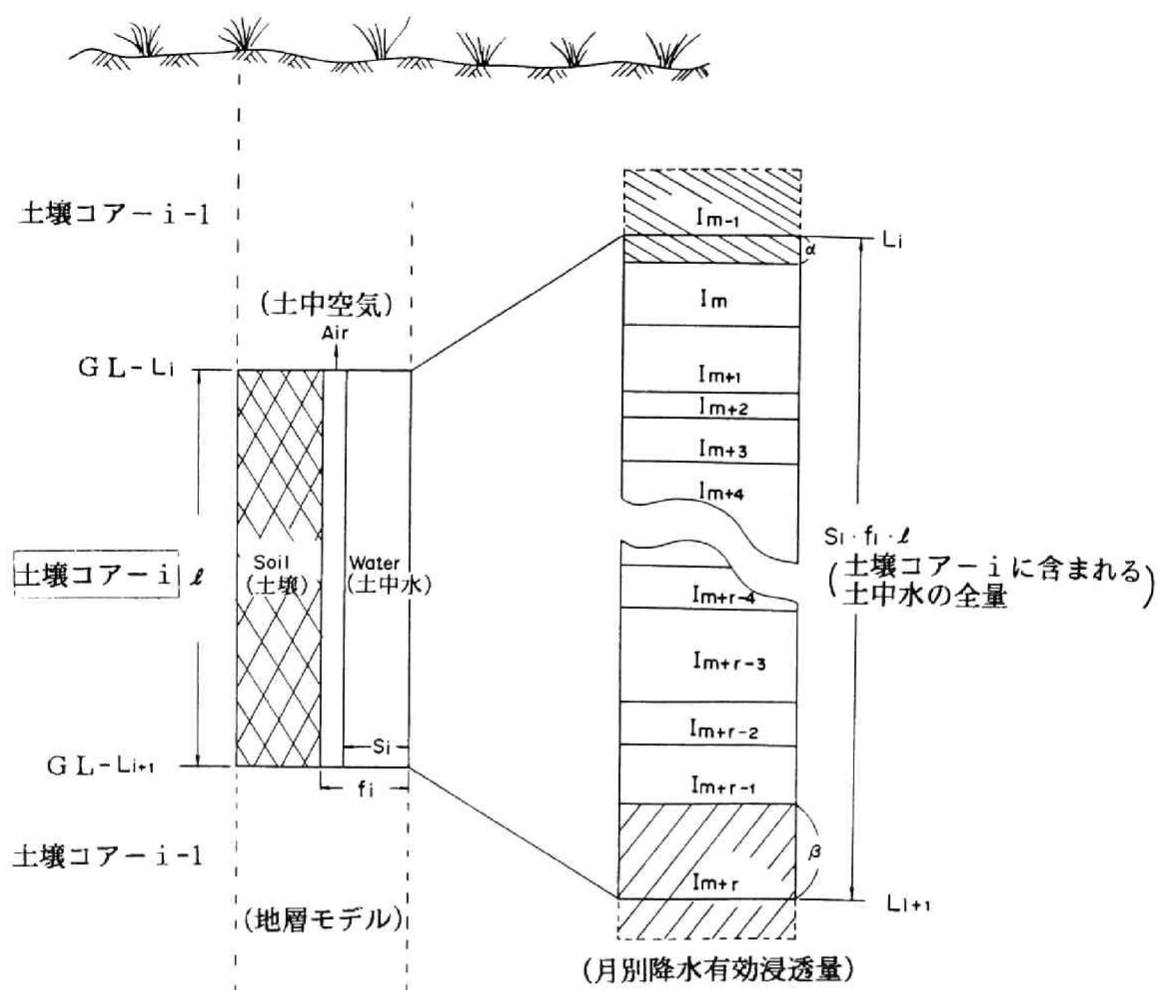


図 2-4 地層構成モデルと降水浸透量との関係

(浸透した降水が土中を分散のないピストン流として流下すると仮定すると、浸透降水は)
 (不飽和層内では、降水年代の古い順に土中水として積重なって存在する)

S_i : 飽和度 f_i : 空隙率

l : 土壌カラムの長さ L_i : 深さ

I_{m+r} : 土壌コア i の採取時点より $m+r$ 月前に浸透した降水有効浸透量

$$\alpha = \left(\sum_{j=1}^{m-1} I_j - \sum_{j=1}^{i-1} (S_j \cdot f_j) \cdot l \right) / I_{m-1}$$

$$\beta = 1 - \left(\sum_{j=1}^{m+r} I_j - \sum_{j=1}^i (S_j \cdot f_j) \cdot l \right) / I_{m+r}$$

(2) 降水トリチウム濃度測定と解析に用いる降水トリチウム濃度データ

土中水のトリチウム濃度解析は、土中水の供給源としての過去の降水に含まれたトリチウム濃度に関する情報を必要とする。また解析の精度を上げるためには、解析対象地点における長期（数年間）の一雨ごとの観測データを必要とするが、実際にはそのような理想的な観測データを入手することは殆ど不可能に近い。そこで本研究では、最も観測データの完備している東京（筑波）のデータ（いずれも理研、気象研および農土試において測定されたものである）を基に現地（長崎）における降水トリチウム濃度測定結果を考慮して解析用データを作ることとした。そのためにはまず、東京（我孫子）と長崎における降水トリチウム濃度の相関性を調べる必要がある。1982年5月より1985年4月まで長崎（長崎大学構内）と我孫子（電中研構内）で降水トリチウム濃度測定を行った。図2-5に1982年5月～1985年4月までの長崎と我孫子の降水トリチウム濃度データを示す。ここでは我孫子のデータが、東京周辺の降水トリチウムデータを代表するものと考えている。なぜならば、嶋田⁽³⁵⁾や葛城⁽⁴²⁾によれば、東京と筑波（我孫子の近傍）の降水トリチウムデータに高い相関性が確認されているからである。

なお嶋田⁽³⁵⁾は、長岡（新潟県）と東京の降水トリチウム濃度を1年間測定し比較した結果相関係数としては、 $r=0.45$ と低いが降水トリチウム濃度の時系列変化の傾向にはさほど大きな差異はないとの理由から東京降水のトリチウム濃度データをわが国の水循環解析データとして活用できると結論している。以上の理由より本研究においては、降水の浸透速度を求めるための土中水トリチウム解析用の基本降水トリチウムデータとしては、東京のデータを基本とし一部長崎のデータを加味して作成したトリチウム濃度データを用いることにする（表2-1参照）。なお、降水トリチウム濃度の測定は、科技庁マニュアル⁽⁴³⁾に準拠し行った。

(3) 土中水トリチウム濃度分布

土中水トリチウムの鉛直方向濃度分布を調べるために西山NA，NB（図2-2参照）地点で採取した未攪乱土壌コア（ $\phi=300\text{mm}$ ）より、500mm間隔で土中水を抽出した。NAコ

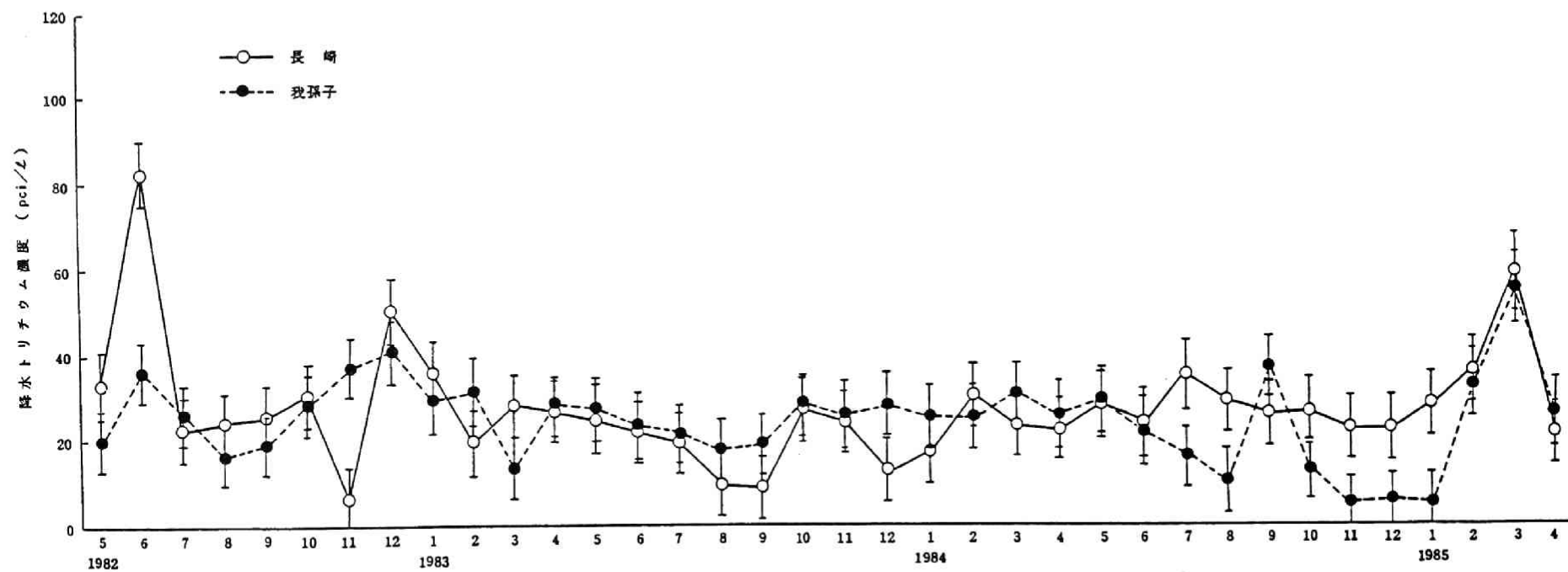


図2-5 長崎・我孫子の月別降水トリチウム濃度 (May of 1982 to April of 1985)

アーからの土中水の抽出は、(i) $pF \leq 3$ までの自由水を遠心分離法**、(ii) $pF > 3$ の半結合水を蒸留法*** によって行った。また土中水トリチウム濃度は、(i)(ii)の方法で得られた各深度別の土中水を科技庁マニュアル「トリチウム分析法」⁽⁴⁶⁾ に準じて測定した。その結果を深度別に表2-2に示す。表2-2に得られた土中水トリチウム濃度および図2-6の土柱内土中水分布を基に土柱長さ50cmごとに地表面から深度225cmまでの自由水($pF \leq 3$)、半結合水+結合水($pF > 3$)のトリチウム濃度を計算し表2-3に示す。その結果によれば、同一深度の自由水トリチウム濃度は、半結合水+結合水のトリチウム濃度より全般に若干低い傾向が見られるが、測定誤差を考慮すると、その差は明確でない。同様な傾向は、樫根⁽⁴¹⁾が関東ローム層で行なった測定においても認められている。従って今後の土中水の採水においては、自由水と半結合水+結合水とを区別することなく一括して蒸留法で採取しても問題はないと考えられる。

* : 不飽和状態の土壌と土中水の間の相互作用によって生じる、圧力ポテンシャル、マトリックポテンシャル、浸透ポテンシャル等の和として表わされる吸引圧あるいは負圧である。また基準とする純水に対する土中水の吸引圧の低下量を水柱高さ (cm) の重力ポテンシャルの大きさの常用対数で表わしたものを pF と呼び次式で定義する。

$$pF = \log_{10}(\Delta\mu) = \log_{10}(\mu_0 - \mu)$$

$\Delta\mu$: 化学ポテンシャル低下量

μ_0 : 基準の純水の化学ポテンシャル

μ : 土中水の化学ポテンシャル

一般に $pF < 3.0$ を自由水、 $3.0 < pF < 4.2$ を半結合水、 $pF > 4.2$ を結合水と呼んでいる。

** : 遠心分離法では、 $pF \leq 4.2$ 程度の半結合水までの採水が可能である。回転数 (n)、回転半径 (r) と pF との間には、次の関係式がある。

$$pF = 2 \log n + \log r - 4.95$$

*** : ここでは、遠心分離法によって自由水脱水後の土壌を蒸留器に入れ加熱し、残存土中水を蒸発させ、得られた水蒸気を冷却装置にて再凝縮させ採水した。

表 2-1 1977年～1982年までの東京における月別降水量と降水トリチウム濃度

年 月	1977		1978		1979		1980		1981		1982	
	トリチウム濃度 (TR)	降水量 (mm)	トリチウム濃度 (TR)	降水量 (mm)	トリチウム濃度 (TR)	降水量 (mm)	トリチウム濃度 (TR)	降水量 (mm)	トリチウム濃度 (TR)	降水量 (mm)	トリチウム濃度 (TR)	降水量 (mm)
1	23.38	19.5	41.24	28.0	24.43	59.0	14.78	88.5	33.22	3.5	12.2	63
2	22.71	27.0	40.60	32.0	8.77	96.0	21.34	26.0	21.60	38.0	9.5	93
3	24.39	167.0	41.63	115.5	31.71	92.0	17.71	173.0	22.69	113.0	11.4	143
4	27.66	110.5	40.15	186.5	44.25	109.5	11.24	107.0	28.74	166.0	10.5	122
5	27.01	96.5	36.98	130.0	27.57	148.5	8.47	154.5	9.95	151.5	9.7	136
6	29.52	202.5	32.08	104.0	26.80	63.0	15.12	172.5	14.00	103.0	24.4	66
7	25.65	91.0	26.30	45.0	36.81	88.5	17.10	202.0	22.12	167.0	6.7	1179
8	21.75	230.5	43.47	26.0	5.41	104.5	16.22	168.5	11.11	133.0	7.2	169
9	12.99	233.5	44.53	124.0	7.25	146.5	10.55	181.5	17.25	138.5	7.7	94
10	21.95	60.0	34.41	147.0	10.01	320.5	3.84	130.0	15.29	343.5	9.2	20
11	24.51	102.5	30.25	65.0	1.83	182.5	9.68	133.5	5.12	99.0	1.9	182
12	33.66	53.5	39.95	27.0	6.44	43.0	5.83	34.0	7.20	7.5	8.0	52

(注) 1977年～1982年 4月までは、東京での観測データ、
1982年 5月以降は、長崎での観測データである。

以上の結果を踏まえ、NB末攪乱コアからの土中水抽出は、自由水、半結合水、結合水の区別をつけずに蒸留法によって行い、トリチウム濃度を測定した。

図2-7～図2-8に深さごとの土中水トリチウム濃度分布を示す。図2-7には、NAでの地表～225cm、図2-8にはNBでの地表から650cm深さまでのトリチウム濃度を示す。NAの土壌コアは1982年10月に、NBの土壌コアは1982年10月に各々採取されたものである。従ってNA試料NB試料には、各々1981年10月と1982年10月までの降水履歴が記録されていると考えられる。

図2-7では、母岩*近傍に25(TR)と高いトリチウム水が存在しており、これは1981年初期の高トリチウム降水の存在によるものと推測される。一方図2-8では、全般に土中水トリチウム濃度は、図2-7に比べ低い。これは、1982年7月の集中豪雨によりきわめて低い

* この周辺は、安山岩を基岩としており、この安山岩の上に安山岩の風化によって生じた土壌層が存在する。この土壌層は、厚い所で8m、薄い所では2m程度である。土壌コアNAの採取地点より10mほど北西に離れた小さな沢には、基岩である安山岩の露頭が見られる。これらの点から判断するに、コアNAは、母岩にまで達していると考えられる。

表 2-2 深度毎の土中水トリチウム濃度分布

深 度 (cm)	自 由 水 (PF ≤ 3)			半結合水+結合水 (PF > 3)		
	採水位置	トリチウム濃度 (pCi/ℓ) (TR)		採水位置	トリチウム濃度 (pCi/ℓ) (TR)	
0						
25		50.2	15.5		44.3	13.7
50		52.2	16.1		61.8	19.1
75		34.7	10.7		67.2	20.8
100		62.5	19.3		72.6	22.4
125		46.7	14.3		50.0	15.5
150		34.8	10.8		36.0	11.1
175		47.8	14.8		39.9	12.3
200		72.1	22.3		70.0	21.6
225					40.9	12.6
					63.3	19.6
					84.1	26.0

トリチウム降水が大量に浸透した影響によるものと考えられる。しかし土中水トリチウム濃度は全般に低いが2～3のピークがみられ、これを過去の降水トリチウム濃度データと比較して考えると、6.5m長さの地層中に1980～1982年までの約2年間の降水が保持されているものと推定される。

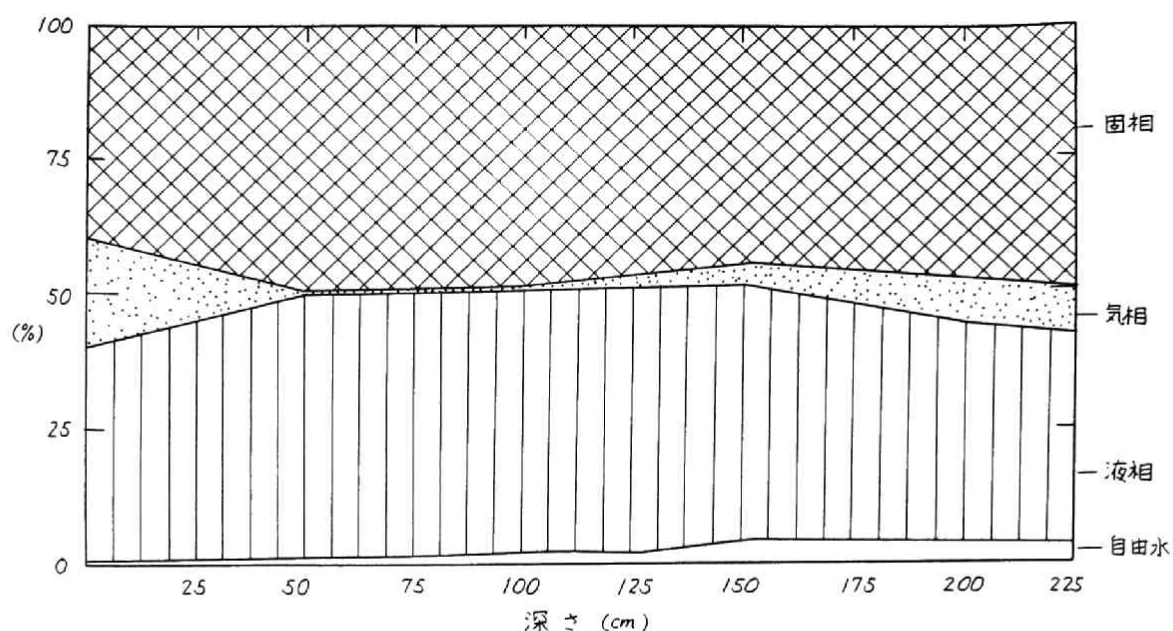


図 2-6 深度別 3 相 (固相, 気相, 液相) 分布と
自由水の採水可能量分布

表 2-3 土中深度毎の土中水トリチウム濃度分布

深 度 (cm)	自由水トリチウム濃度		半結合水+ 結合水トリチウム濃度	
	(pCi/ℓ)	(TR)	(pCi/ℓ)	(TR)
10-50	50.2	15.5	55.0	17.0
50-100	42.4	13.1	49.1	15.2
100-150	53.1	16.4	54.8	16.9
150-200	41.7	12.8	51.8	15.9
200-225	72.1	22.3	84.1	26.0

(4) 西山地区における降水浸透速度の推定

西山地区における降水浸透速度を求めるためには、まず月ごとの降水浸透量を推定する必要がある。西山における気象観測データはないので長崎市南山手にある長崎海洋気象台において観測された 1977 年～1982 年までの月間降水量と 気象データを基に Penman⁽⁴⁴⁾ 法で推定した月間蒸発散量および推定浸透量を表 2-4 に示す。

表 2-1 の降水トリチウムデータおよび表 2-4 の浸透量を基にボーリング孔 NA, NB の土中水について押出し流れモデルにより解析した土中水トリチウム濃度分布と実測結果とを図 2-7～2-8 にそれぞれ比較し示す。本解析手法には、今後改良の余地を残してはいる

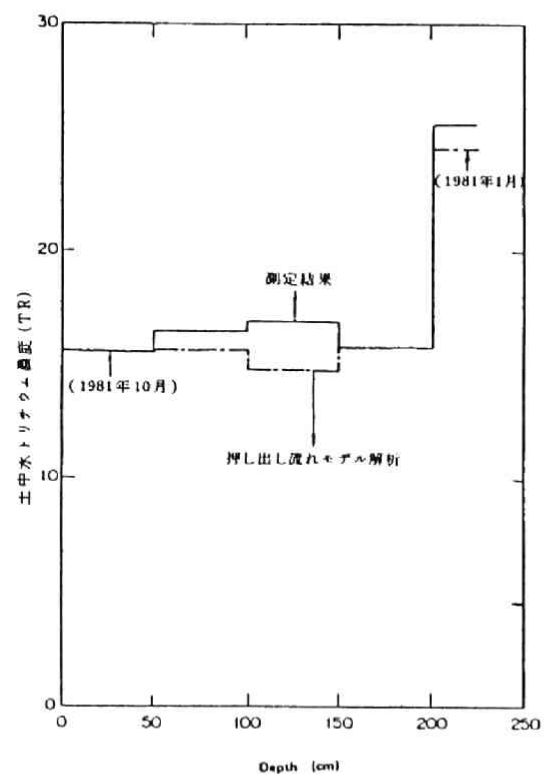


図 2-7 NA 地点における土中水*トリチウム分布と
押し出し流れモデルによる解析結果
(*: 全 pF 域の土中水を含む)

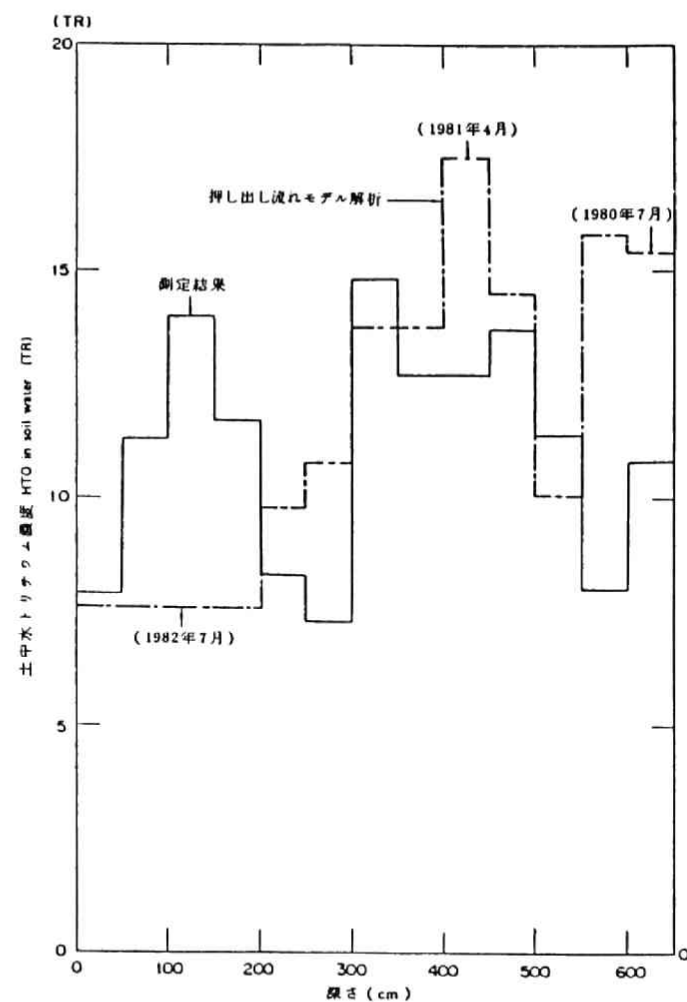


図 2-8 NB 地点における土中水*トリチウム分布と
押し出し流れモデルによる解析結果
(*: 全 pF 域の土中水を含む)

表 2-4 長崎における降水量, 蒸発量および浸透量 (その1)

年 月	降 水 量 (mm)	蒸 発 散 量 (mm)	浸透可能量 (mm)	有効浸透量 (mm)	1982年10月 か ら の 総 浸 透 量 (mm)
1977年 1月	29	15.8	13.2	13.2	7,138.2
2	61.5	20.7	40.8	40.8	7,125.0
3	88.5	47.1	41.4	41.4	7,084.2
4	169.0	64.4	104.6	104.6	7,042.8
5	185.5	76.8	108.7	108.7	6,938.2
6	420.0	82.3	337.7	286.1	6,829.5
7	85.0	136.6	-51.6	0	6,543.4
8	218.0	131.8	86.2	13.5	6,543.4
9	84.0	104.6	-20.6	0	6,529.9
10	29.0	81.1	-52.1	0	6,529.9
11	103.0	37.2	65.8	65.8	6,529.9
12	64.0	20.8	43.2	43.2	6,464.1
1978年 1月	92.5	20.5	72.0	72.0	6,420.9
2	26.5	23.9	2.6	2.6	6,348.9
3	58.5	48.8	9.7	9.7	6,346.3
4	160.0	64.4	95.6	59.5	6,336.6
5	55.0	91.1	-36.1	0	6,277.1
6	354.5	85.7	268.8	142.5	6,277.1
7	24.5	150.8	-126.3	0	6,134.6
8	166.0	146.8	19.2	19.2	6,134.6
9	120.0	87.0	33.0	12.6	6,115.4
10	55.0	75.4	-20.4	0	6,102.8
11	63.0	35.7	27.3	27.3	6,102.8
12	67.5	18.8	48.7	48.7	6,075.5
1979年 1月	98.0	16.6	81.4	81.4	6,026.8
2	148.5	21.4	127.1	127.1	5,945.4
3	141.0	43.5	97.5	97.5	5,818.3
4	240.0	67.3	172.7	165.5	5,720.8
5	84.5	91.7	-7.2	0	5,555.3
6	560.0	80.6	479.4	479.4	5,555.3
7	273.0	114.8	158.2	158.2	5,075.9
8	166.0	141.5	-24.5	16.3	4,917.7
9	120.0	103.8	16.2	0	4,901.4
10	55.0	79.4	24.4	0	4,901.4
11	63.0	33.0	30.0	30.0	4,901.4
12	67.5	19.6	47.9	47.9	4,871.4

表 2-4 長崎における降水量、蒸発量および浸透量 (その2)

年 月	降 水 量 (mm)	蒸 発 散 量 (mm)	浸透可能量 (mm)	有効浸透量 (mm)	1982年10月 か ら の 総 浸 透 量 (mm)
1980年 1月	118.5	17.1	101.4	101.4	4,832.5
2	52.0	19.8	32.2	32.2	4,722.1
3	151.5	41.1	110.4	110.4	4,689.9
4	179.5	63.9	115.6	115.6	4,579.5
5	288.5	86.5	202.0	202.0	4,463.9
6	256.0	79.4	176.6	176.6	4,261.9
7	864.0	96.5	767.5	767.5	4,085.3
8	410.0	100.6	309.4	309.4	3,317.8
9	156.0	101.5	54.5	54.5	3,008.4
10	246.0	70.2	175.8	175.8	2,953.9
11	43.0	35.7	7.3	7.3	2,778.1
12	61.0	23.7	37.3	37.3	2,770.8
1981年 1月	38.0	17.5	20.5	20.5	2,733.5
2	92.5	22.1	70.4	70.4	2,713.0
3	137.5	37.3	100.2	100.2	2,642.6
4	200.5	61.4	139.1	139.1	2,542.4
5	148.5	83.0	65.5	65.5	2,403.3
6	491.0	83.2	407.8	387.7	2,337.8
7	119.5	139.6	-20.1	0	1,950.1
8	263.5	136.3	127.2	127.2	1,950.1
9	287.5	99.5	188.0	188.0	1,822.9
10	266.0	71.7	194.3	194.3	1,634.9
11	142.0	32.8	109.2	105.1	1,440.6
12	16.0	20.1	-4.1	0	1,335.5
1982年 1月	63.0	19.3	43.7	43.7	1,335.5
2	96.0	19.8	76.2	76.2	1,291.8
3	143.0	43.7	99.3	99.3	1,215.6
4	122.0	63.7	58.3	58.3	1,116.3
5	135.5	89.7	45.8	10.4	1,058.0
6	66.0	101.4	-35.4	0	1,047.6
7	1,178.5	102.6	1,075.9	1,047.6	1,047.6
8	169.0	138.6	30.4	0	0
9	94.0	95.6	-1.6	0	0
10	20.0	77.1	-57.1	0	0
11	181.5	35.9	149.6	-	-
12	51.5	21.1	30.4	-	-

が、NAのボーリング地点において、最下部層（200～250cm）の土中水トリチウム濃度が、その上部の土中水トリチウム濃度より有意に高くそのトリチウム濃度が1981年初旬（1月ごろ）の降水トリチウム濃度（放射崩壊を考慮した）に近いこと（図 2-7参照）および、NBボーリング地点でのトリチウム濃度分布において1981年初旬頃のトリチウムピークを示すと思われる浸透降水が3.5m～5.0m付近に見られること（図 2-8参照）、以上のことを総合的に判断すると、西山地区における降水の平均的な浸透速度は、2.0～3.0m/yの範囲にあると考えられる。

ここでの推定結果の妥当性を確認する目的で 西山コアを採取した 近くの 未耕地で Br^- イオンをトレーサーとした降水浸透トレーサー試験を 1983年10月～1984年11月までの13ヶ月間実施した。試験はKBr および NaBr（Brとして724g）を面積100cm×100cmの厚さ2cmの土壌に均一に混合しその後は自然条件下で放置し13ヶ月後に鉛直方向の Br^- イオン濃度分布を未攪乱土壌コアを採取し蒸留水によって抽出後イオンクロマト分析により調べた。その結果、図2-9 に示すように Br^- は地表から50～60cmと90～110cm付近にピークを持ち、 Br^- の浸透フロントは深さ 220cm付近にまで達していた。一般に Br^- は、 D_2O^* をトレーサーとした水の移動に比べると若干遅れる傾向にあり、関東ロームでは、その遅延係数Rは1.2～1.3⁽⁴⁵⁾y 程度であり西山シルト質ロームでは、 $R = 1.27^{(45)}$ であった。以上をもとに Br^- イオンをトレーサーとして降水の浸透速度を推定すると、降水は年間平均で2.5m/y程度で移動していることになる。この結果は、前記のピストン流と蒸発さを考慮した押し出し流れモデルによる解析結果とも良く一致している。

(5) 結論

西山シルト質ローム層における降水の不飽和浸透実態を環境のトリチウムをトレーサーとして利用し、土水中トリチウム濃度の鉛直分布を押し出し流れモデルによって解析すると同時に、 Br^- イオンをトレーサーとしたトレーサー試験によって結果の追試を行なった。それによって以下の結論を得た。

- 1) 西山シルト質ローム層内での降水の浸透速度は、2～3 m/yであり平均すると2.5m/y程度であった。

* D_2O の分析は、ガスクロ法により行なった。

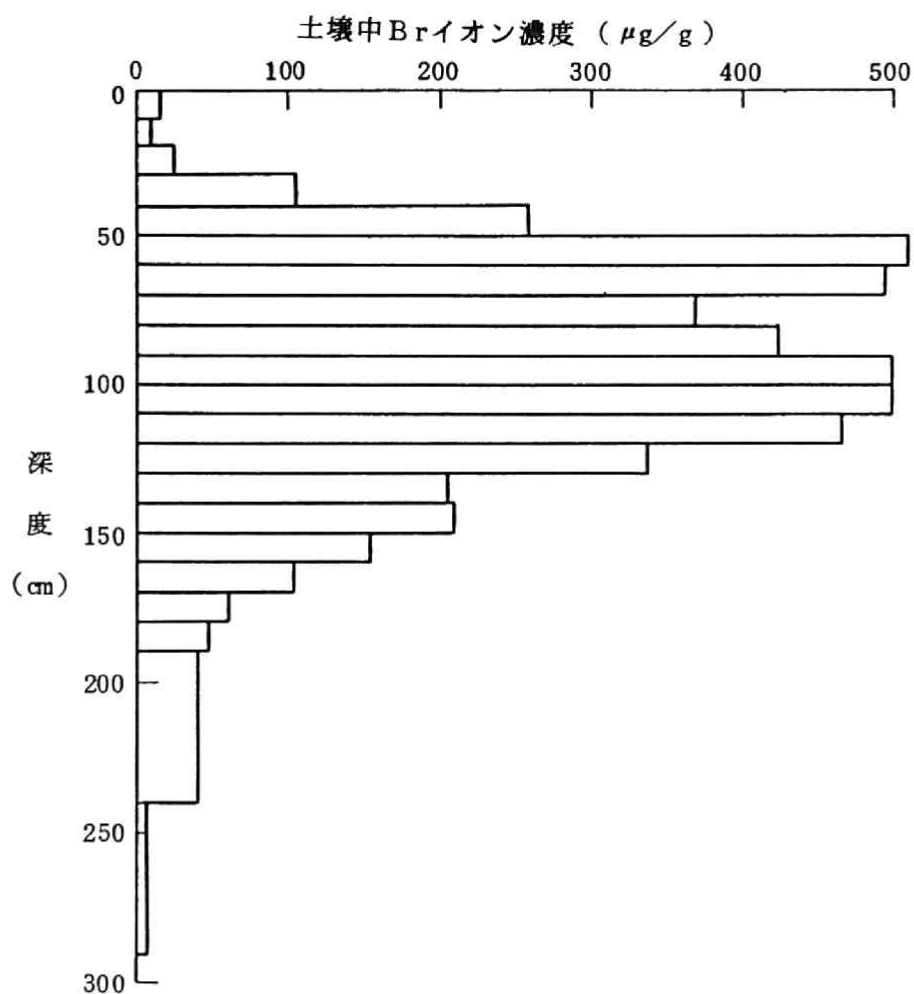


図 2-9 西山未攪乱土壤中でのBrイオン濃度分布
(13ヶ月間の自然条件下でのBr
イオン浸透実験終了時)

- 2) 西山シルト質ローム層内での降水の不飽和浸透は、全体的にはきわめてゆるやかなピストン流として扱うことが可能である。
- 3) 不飽和層内の降水の浸透は、環境トリチウムを活用した押出し流れモデルによって十分解析が可能である。

2.3.3 実環境条件下でのフォールアウト・プルトニウムの地中移動

プルトニウム (Pu) は、ほとんどが人工元素であり⁽⁴⁶⁾ 現在までに質量231から247までの17種の同位体が発見されているが、それらはすべて放射性同位体である。これらの中

で核燃料あるいは廃棄物（Nuclear Waste）に含まれるプルトニウムは質量238～242までの5種の同位体で、核燃料サイクル中特に重要な同位体は、核分裂性である質量数239（ ^{239}Pu ）と241（ ^{241}Pu ）である。中でも ^{239}Pu の半減期は24390年と非常に長くその上生物に対する放射線毒性が⁽⁴⁷⁾高いのでこれらを含む α 廃棄物は、人間社会からの隔絶を計るために将来地下深層への地層処分が計画されている⁽⁴⁸⁾。地層処分は、慎重な検討と厳重な管理の下に実施されるであろう。しかし不測の事故によるプルトニウムの地圏環境への漏洩を考えた場合、漏洩地点より人体への摂取までの経路を想定しプルトニウムの地中での移動速度とりわけ人間活動等により直接的な接触を持つ可能性の高い通気層内における移動速度を検討しておくことは、プルトニウム廃棄物の地層処分の安全評価の精度を高める上で意義深いことと考えられる。プルトニウムは取扱上法的規制も厳しいので、プルトニウムの土壌に対する分配係数あるいは遅延係数の測定のように簡単な室内実験も容易に行なえない場合も多く、プルトニウムを直接トレーサーとして取扱った地中移行の研究は遅れている。ここでは長崎原爆フォールアウト・プルトニウムに着目し、実環境下での約40年間の移動分布を調査しプルトニウムの地中での移動速度を実測することにより遅延係数および分配係数を推定した。

(1) フォールアウト・プルトニウムの地表面蓄積濃度分布

フォールアウト・プルトニウムの浸透速度を求めるには、プルトニウムが地表面に沈着してから土壌サンプルを採取するまでの経過時間を知る必要がある。このためには、フォールアウトの降下起源が明らかでなければならない。この点では、長崎原爆により生じたフォールアウトは降下の日・時が明らかで、しかも長崎市西山地区には大量に降下したことが過去に多くの研究者により明らかにされている⁽⁴⁹⁻⁵³⁾。さらに降下起源*を明確にするために以下の調査を行った。

まず、フォールアウトが大量に降下した西山と逆に長崎原爆のフォールアウトの影響が非常に小さかったと考えられる小江原、金堀と若干の影響があったと考えられる江平の4地区（図2-10参照）の未耕地において地表面から深さ30cmまでの土壌に含まれる $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の濃度分布を調査した。その際、小江原、金堀は、爆心地より西に

* 原爆の際に生じた局地フォールアウトと世界規模での核実験からのグローバル・フォールアウトに起因するものとは、核種および同位体比等の違いがある。



3 km、1.5 kmの距離にあり、西山、江平は爆心地より東に3 km、1.5 kmの地点にある。また、小江原と西山、金掘と江平は爆心を東西に走る直線上で爆心から半径3 km、1.5 kmの同心円上に位置している。

$^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の土壌濃度分布測定結果を図2-11に示す。それによれば、 $^{239+240}\text{Pu}$ の分布では、爆心の東側と西側では、濃度において著しい差が見られる。爆心地より西側に位置する小江原、金掘地区では、 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は、10 cm深さの土壌に対する我国の平均的レベルである⁽⁵⁴⁻⁵⁶⁾ 20~50 pCi/kgの範囲に含まれており長崎原爆のフォールアウト降下の影響が小さかったと判断できる。一方、爆心地の東側に位置する江平地区では、10 cm深さの土壌中に67 pCi/kgの $^{239+240}\text{Pu}$ が含まれ、これは、やや我国の平均レベルを上回る結果となっている。また西山地区では、630 pCi/kgと我国の平均レベルを10~30倍と上回っており、この結果を長崎原爆の末核分裂Puの影響だと考えることは妥当である。さらにHardy⁽⁵⁷⁾等のグローバルフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の地球規模での降下蓄積分布を基に西山地区でのグローバルフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ 降下量を推定すると0.16 pCi/cm²となる。一方末攪乱土壌コアの空隙率と土壌密度と $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度分布を基に小江原と西山での $^{239+240}\text{Pu}$ 降下量を推定すると、各々0.18 pCi/cm²と5.91 pCi/cm²とであった。これから推定すると西山地区に降下蓄積しているフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の約97%は、1945年8月9日に降下した長崎原爆の局地フォールアウトによるものと推定できる。小村等⁽⁵⁸⁾は、西山土壌に含まれるプルトニウムの $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比を測定することにより、長崎原爆の寄与を95±2%と推定しており、本結果ともよく一致している。

次に、フォールアウト・プルトニウム鉛直濃度分布を決定するためのボーリング地点を選定する目的で、未耕地の地表面（深度0~3 cm）のプルトニウム蓄積濃度分布を長崎市西山地区において実施した。

土壌を採取した場所は、図2-2に示す10ヶ所である。サンプリングは降下したフォールアウトの亡失が少ないと考えられるなるべく平坦な場所を選んで行なった。測定試料は1ヶ所につき3地点（面積：100 cm×100 cm，深度：0~3 cm）で乾土として2~3 kgを採取し、3地点の試料を合わせて1測定試料とした。

採取した土壌は、全量を約50時間110℃にて恒温乾燥させ土壌水分を除去した後、土壌の粉碎、木の根など植生や岩石の除去を行ない、まず2 mmフルイで分級した。次に2 mm以下の土壌粒子を0.5 mmフルイを通過するまで鉄乳鉢にて細かくし試料とした。以上の前

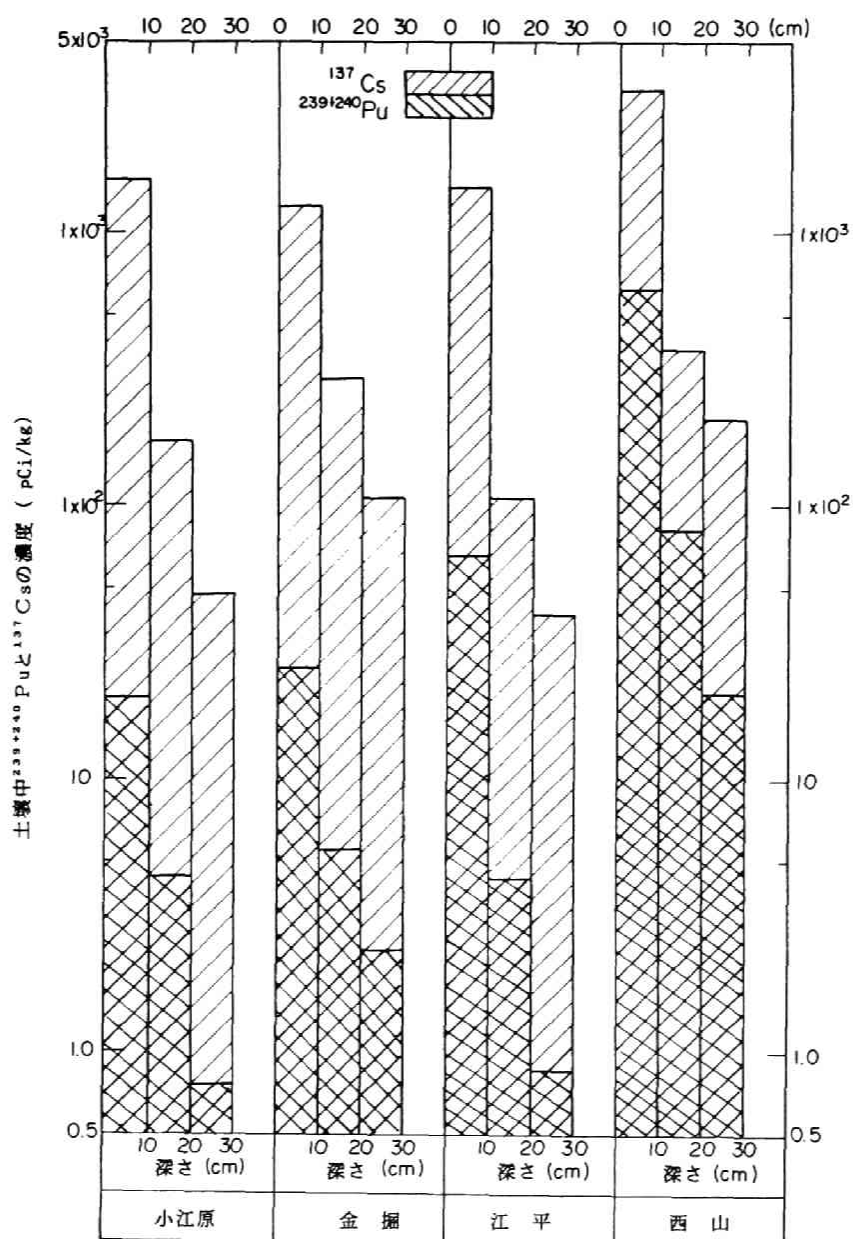


図 2-11 長崎の土壌中の $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の鉛直分布

処理を施した土壌試料を十分に攪拌した後、その内から300gを（プルトニウム分析用として）分取した。

プルトニウムの分析は、科技庁マニュアル「プルトニウム分析法」⁽⁵³⁾に準じ化学分離後ステンレス板上にプルトニウムを電着の後 α スペクトロメトリーによって定量した。なお、分析は、（財）日本分析センターに委託実施した。

地表面（深度0～3cm）土壌吸着プルトニウム及びピュアーGe検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーによって測定したセシウム-137濃度測定結果と1945年に計測された残留放

射能等線量率曲線⁽⁴⁹⁾との間には比較的強い相関性が認められる（図2-12参照）。

また $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ の比を調べると①～⑩の地点では、⑤を除いてほぼ0.2～0.4の範囲にある（表2-5参照）。比較のために $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ の値を東京⁽⁴²⁾、秋田⁽⁴²⁾、福井⁽⁵⁶⁾、ISPRA（イタリー）⁽⁶⁰⁾および大気起源のグローバルフォールアウト⁽⁶¹⁾と比較してみるとその比は各々0.006、0.012、0.01～0.02、0.017、0.017～0.01とほぼ0.01～0.02の範囲におさまっている。このことから西山地区における $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度が著しく他所よりも高いことおよびその原因が長崎原爆の末核分裂プルトニウムのフォールアウトが原因であることが確認された*。

地表面濃度分布を基に $^{239+240}\text{Pu}$ 鉛直濃度分布を調べるための大孔径末攪乱土壌コア採取地点NA、NBを図2-2のように決定した。

(2) フォールアウト・プルトニウム鉛直濃度分布

西山NA（1981年10月）、NB（1982年10月）においてボックスサンプリング（図2-13参照）によって末攪乱土壌コアを連続採取した。NAコア（ $\phi=30\text{cm}$ ）は全長225cm、NBコア（ $\phi=20\text{cm}$ ）は全長650cmであった。いずれのコアも岩盤に着定するまでの風化土壌部を採取した。土壌中のプルトニウム濃度は、地表面付近では5cmないし10cm間隔で土壌をスライスし、また1m以深では、25cmないし50cm間隔で土壌をスライスした。プルトニウムを分析するための土壌の前処理およびプルトニウム分析は、前項の手法に従った。表2-6に土壌物性を示す。図2-14にNA地点でのプルトニウムの地中分布を示す。これによれば

- 1) プルトニウムは、地表面、0cmから10cm深さまでに総吸着量の90%、20cmまでに95%、30cmまでに97%が吸着されている。
- 2) 総吸着量の3%程度が、深さ30cm以深の少なくとも225cmまでにほぼ均一（1.00 pCi/kg）に分布していることが判明した。

* $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ は、原爆局地フォールアウト（西山土壌）の場合 0.1以上、グローバルフォールアウトの場合 0.01～0.02である。またプルトニウムの同位体比 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ は、西山土壌では 0.1以下で、グローバルフォールアウトでは、 0.176 ± 0.014 で、以上よりいずれの比もグローバルフォールアウトの値とは大きく異なっている。

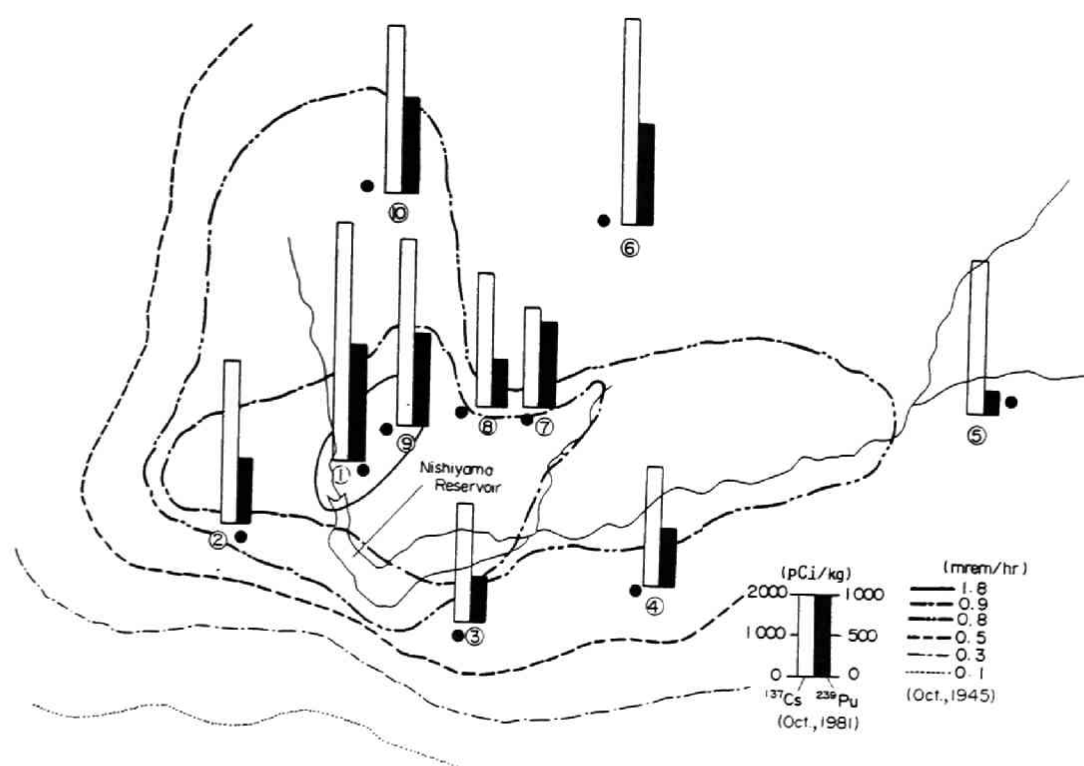


図 2-12 昭和56年10月現在の地表面土壌プルトニウム、セシウム蓄積
吸着濃度分布と昭和20年10月の残留放射能等強度曲線

表 2-5 西山土壌 (0~3 cm) プルトニウム、セシウム吸着濃度

採取場所	プルトニウム分析			セシウム分析	プルトニウム / セシウム	
	Pu (pCi/kg 乾土)	Pu (pCi/kg 乾土)	$\frac{238\text{Pu}}{239+240\text{Pu}}$	^{137}Cs (pCi/kg 乾土)	$\frac{239+240\text{Pu}}{^{137}\text{Cs}}$	$\frac{238\text{Pu}}{^{137}\text{Cs}}$
①	1500±110	77±6.7	0.051	6100±0	0.246	0.013
②	810±51	45±3.6	0.055	4100±41	0.198	0.011
③	530±33	29±2.5	0.054	3000±30	0.177	0.010
④	710±43	34±2.7	0.048	3000±30	0.237	0.011
⑤	280±18	24±2.2	0.086	3900±39	0.072	0.006
⑥	1200±80	59±4.5	0.048	5200±52	0.231	0.011
⑦	1100±70	59±4.6	0.055	2500±25	0.440	0.024
⑧	620±38	31±2.6	0.050	3400±34	0.182	0.009
⑨	1200±80	66±5.1	0.053	4700±0	0.255	0.014
⑩	1200±90	62±5.8	0.050	4200±0	0.286	0.015

表 2-6 コア-N A, N Bの土壌物性

土壌 コア-	深 度 (m)	土 壌 粒 度 分 布 (%)				土 壌 密 度 (g/cm ³)	陽イオン交換 容 量 (meq/100g)	空 隙 率 (%)	飽 和 度 (%)
		礫	砂	シルト	粘 土				
N A	0 ~0.5	0	10	47	43	2.59	13.2	64	62
	0.5~1.0	0	12	51	37	2.68	18.0	56	92
	1.0~1.5	0	10	49	41	2.66	14.9	57	89
	1.5~2.0	0	20	43	37	2.71	10.8	59	86
	2.0~2.25	0	55	33	12	2.70	25.2	58	73
N B	0 ~0.5	0	2	34	64	2.60	34.9	76	42
	0.5~1.0	0	10	58	32	2.60	26.0	73	56
	1.0~1.5	0	12	51	37	2.60	27.9	72	70
	1.5~2.0	0	31	39	30	2.52	32.6	71	67
	2.0~2.5	0	10	48	42	2.56	33.5	71	72
	2.5~3.0	0	26	41	33	2.50	31.9	69	75
	3.0~3.5	0	15	47	38	2.51	30.9	72	71
	3.5~4.0	0	8	46	46	2.48	27.8	71	73
	4.0~4.5	0	22	47	31	2.56	30.8	67	73
	4.5~5.0	0	12	52	36	2.54	33.3	67	64
	5.0~5.5	0	21	50	29	2.57	28.8	68	70
	5.5~6.0	0	38	42	20	2.63	20.5	67	75
	6.0~6.5	0	34	44	22	2.64	21.3	67	80



(写真A)



(写真A) 未攪乱土壌コア掘削の様子

(写真B) 深度 4.5m付近での未攪乱土壌コア

(写真B)

(断面図)

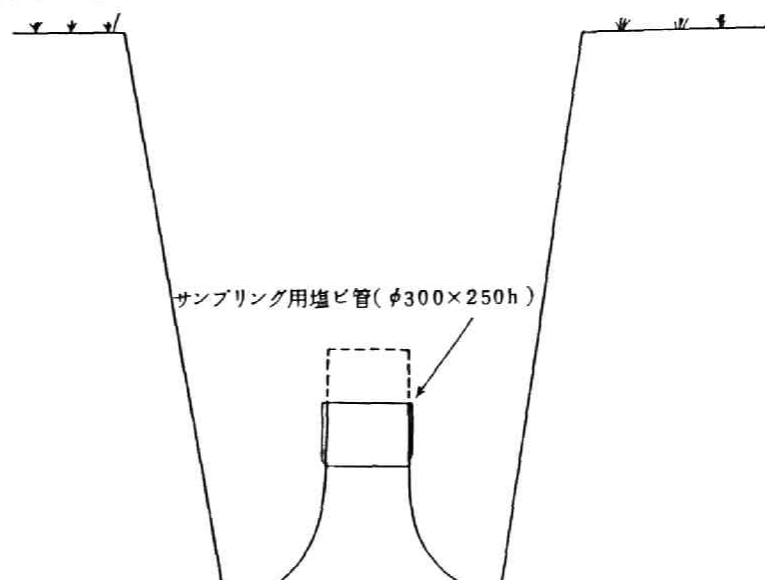


図 2-13 未攪乱土壌サンプリング法および
サンプリング作業の様子 (写真)

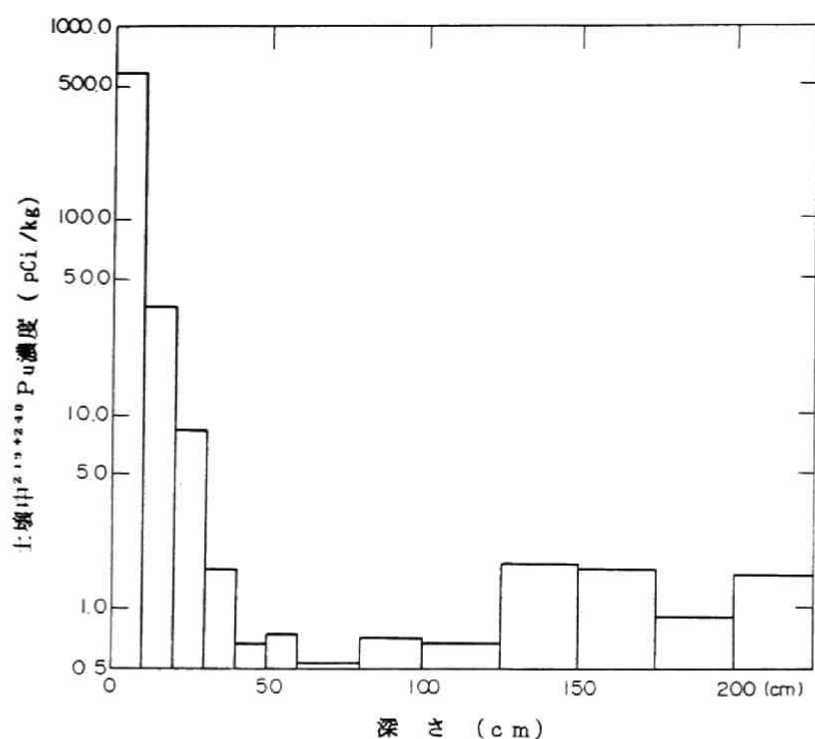


図 2-14 NA 地点における $^{239+240}\text{Pu}$ 鉛直濃度分布

図2-15にNB地点でのプルトニウムの地中分布を示す。これによれば

- 1) プルトニウムは、地表から30cmまでに90%以上が吸着されていた、
- 2) 深さ30cmから、650cmの間には、極低濃度ではあるがプルトニウムが分布していることが判明した。

未攪乱土壌中のフォールアウト・プルトニウム鉛直濃度分布については、Hardy⁽⁵⁷⁾、Bordoli⁽⁶⁰⁾、Romney⁽⁶¹⁾、Yamamoto⁽⁶²⁾、Yamato⁽⁶³⁾によって様々な場所で測定されているが、その結果を見ると、地表面から10cmまでの間に90%程度、20cmまでにほとんど全量が吸着されていることが報告されており、それらの結果と比較してみてもここで得られた鉛直濃度分布は、きわめて妥当な結果と考えられる(図2-14～2-15参照)。

一方、総吸着プルトニウムの3～10%程度は、土壌に強く吸着されることなく降水の浸透と共に地表より深く岩盤上まで浸透移動していることがわかった(図2-14～2-15参照)。また、地表面近傍を除いて、50cm以深において極低濃度で分布しているプルトニ

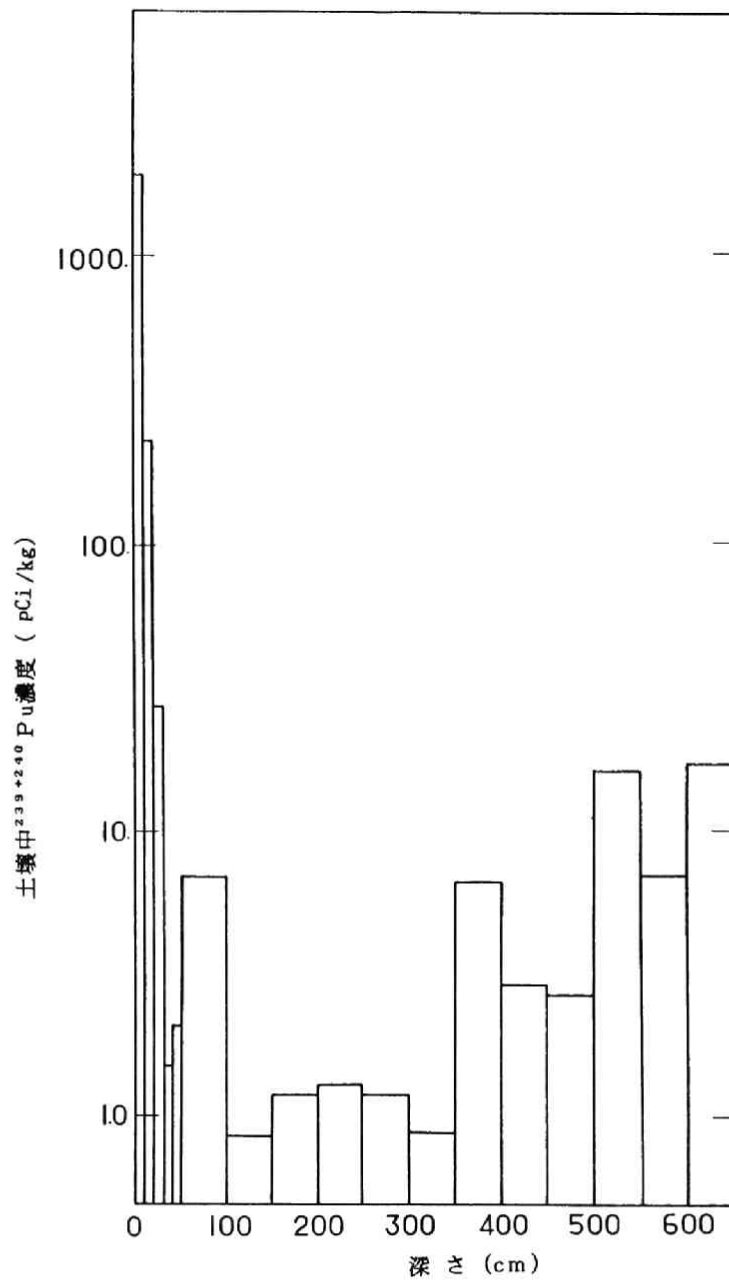


図 2-15 NB 地点における $^{239+240}\text{Pu}$ 鉛直濃度分布

ウム濃度と周辺土壌中の陽イオン交換容量* との間では、相関性が見出せない。このことは、一般には、プルトニウムが著しく大きな分配係数⁽⁶⁵⁾を持つことを考えると、これら深度に極低濃度で存在するプルトニウムは、陽イオンとして存在するのではなく別

* 陽イオン交換容量： NH_4 置換による Schöllenger and Simon⁽⁶³⁾法および Ca^{2+} 置換法によって求めた。

の化学形態を有す移動性の高いプルトニウム (mobile plutonium) を形成しているか、微細粒子への吸着体による移動かあるいは地中の大間隙を速く浸透する降水の影響によるものと考えられる。

西山 NAボーリング孔内および、ごく近傍にある岩盤上の湧水から採取した地下水 243.7ℓ を0.45μmミリポアフィルターで濾過した濾水を分析した結果、 $0.66 \pm 0.13 \text{ fCi}/\ell$ の $^{239+240}\text{Pu}$ が検出された。なお、Puの検出限界は、 $0.20 \text{ fCi}/\ell$ であった。湧水の採取は、湧水期に1週間以上降水がなく地下水のみが湧出していると考えられる時期に行った。この結果は、地下水中には、わずかながら定常的に $^{239+240}\text{Pu}$ が溶出しており、移動性の高いプルトニウムの存在を示唆しているものと受けとれる。

(3) フォールアウト・プルトニウムの鉛直浸透速度の推定

フォールアウト・プルトニウムの地中での平均的な移動速度推定のために、降水もプルトニウムも通気層中を鉛直方向に浸透するものと仮定して簡単な一次元移流拡散方程式の理論曲線とプルトニウムの吸着濃度分布をフィッティングして遅延係数を求めた。

吸着理論曲線は、次式

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \left(-\frac{D}{R}\right) \frac{\partial^2 C}{\partial Z^2} - \left(\frac{U}{R}\right) \frac{\partial C}{\partial Z} \quad \dots\dots\dots (2-41)$$

ここに C : 土中水 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度 (pCi/ℓ)

D : 水の拡散係数 (m²/y)

U : 水の浸透速度 (m/y)

R : 遅延係数

Z : 地表面からの距離 (m)

t : 時間 (y)

で表わされる。(2-41) 式を次の初期条件と境界条件

$$\begin{array}{lll} C = 0 & Z > 0 & t = 0 \\ C = C_0 & Z = 0 & t > 0 \\ C = 0 & Z = \infty & t > 0 \end{array} \quad \dots\dots\dots (2-42)$$

の下で解くと、理論吸着曲線を与える式(2-43) が得られる。

$$\frac{C}{C_0} = \frac{1}{2} \left[\text{erfc} \left(\frac{Z-Vt}{(4D^*t)^{1/2}} \right) + \exp \left(\frac{VZ}{D^*} \right) \text{erfc} \left(\frac{Z+Vt}{(4D^*t)^{1/2}} \right) \right] \quad \dots\dots\dots (2-43)$$

$$\text{ここに } D^* = D/R$$

$$U^* = U/R$$

解析においては、(2-42) 式において、“地表面核種濃度が時間に対し一定”という仮定を置いている。この仮定は、一般にフォールアウト核種濃度が地表面のごく近傍に高濃度で蓄積している多くの測定結果を考慮すれば 妥当な境界条件と考えられる。また (2-43) 式中では、 $^{239+240}\text{Pu}$ の半減期による減衰は 考慮されていないが、これも $^{239+240}\text{Pu}$ の半減期が評価期間40年に比べれば十分に長いことから、放射崩壊による補正の必要はないと考えられる。NA, NB 地点での $^{239+240}\text{Pu}$ の鉛直吸着濃度分布に (2-43) 式を遅延係数 $1000 \leq R \leq 5000$ の間で変化させて得られた理論曲線をフッティングさせて R の大きさを推定した結果を図2-16に示す。理論曲線を描く際に使用した各パラメータは、前節での結果より浸透速度 $U = 2.5\text{m/y}$ 、水の拡散係数としては、嶋田⁽³⁰⁾ が同様な粘性土である関東ロームで測定した $D = 0.07\text{m}^2/\text{y}$ を採用した。なお、この評価においては、NA では 0～30cm、NB では 0～50cm 深さまでに吸着されているプルトニウムを対象に行った。その理由は、NA の 30cm と NB の 50cm 以浅の Pu と NA の 30cm と NB の 50cm 以深に存在する Pu に対し 同一分配係数を適用することは、その移動速度の明らかな違いから困難である。この点から NA の 30cm 以深と NB の 50cm 以深に含まれるプルトニウムは2.3.3の(2)で述べたようにそれより以浅に存在する吸着プルトニウムが、図2-17のpH-Ehダイアグラム⁽⁶⁶⁾で判断すると $\text{PuO}_2^*(\text{Pu(V)価})$ として存在する可能性が高いこと、および Nelson等⁽⁶⁷⁾ の報告にある Pu(V+VI) の分配係数 $\sim 10^3 (\text{ml/g})$ と比較しても同程度の分配係数を有すことを考慮すると、これら地表近傍の浅層に存在する Pu とは化学形態あるいは移行形態の異なるプルトニウムであると解釈される。

図2-16に示す結果から西山シルト・ローム層内での $^{239+240}\text{Pu}$ の遅延係数としては、 $R \approx 2000$ 程度であり、プルトニウムの移動速度は、 1.25mm/y ときわめて小さなものであった。その際分配係数 (k_{dpu}) としては、土壌物性値 (表2-5～2-6) を基に NA コアーでは 860ml/g 、NB コアーでは 1000ml/g と推定された。

ここで得られた分配係数は、いずれも Pu(IV価) の分配係数として次章3.3で報告するものよりも約1桁小さい傾向にある。これは、フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の酸化状態が Pu(III+IV) 価を主体としたものではなく、 Pu(V+VI) 価を主体としていることが原因の1つであると推測される⁽⁶¹⁾⁽⁶⁸⁾。

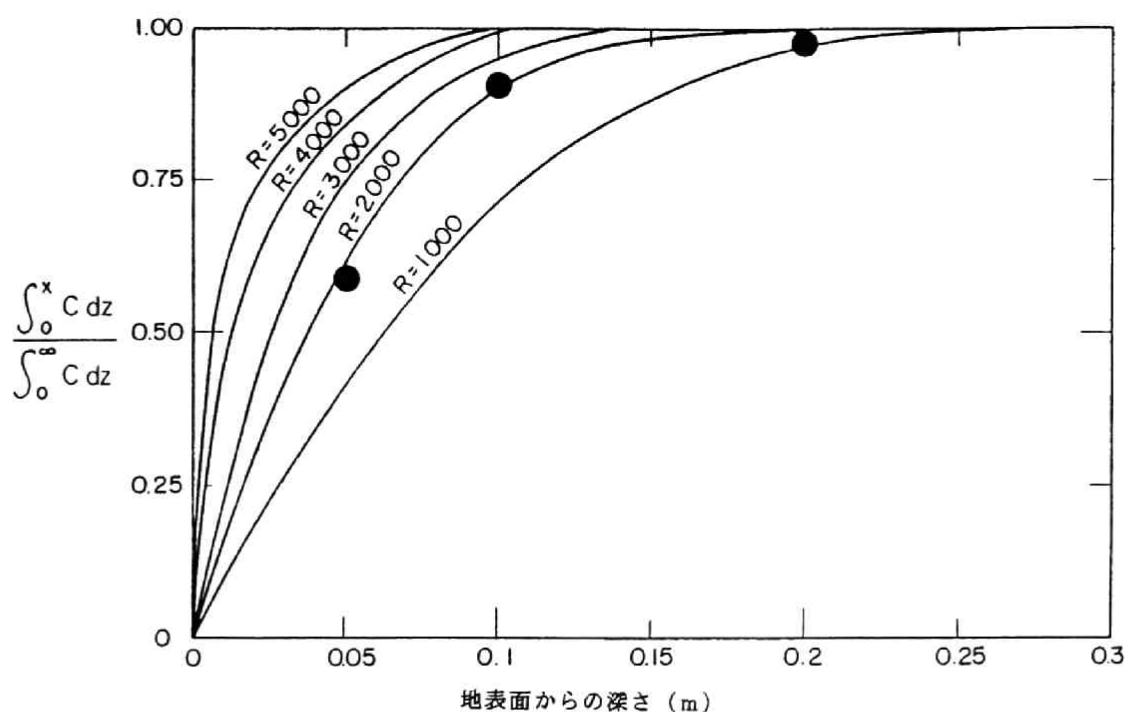


図 2-16 土壌中実測された $^{239+240}\text{Pu}$ の積算吸着量と種々に遅延係数を変化させた理論吸着積算曲線

(●：実測値，R：遅延係数)

(4) 分配係数測定へのフォールアウト・プルトニウム利用の有効性の検討

一般にPuの分配係数は、その酸化状態(Ⅲ、Ⅳ、Ⅴ、Ⅵ)の違いによって大きく異なりCleveland⁽⁶³⁾によれば酸化状態等を考慮せずに測定された分配係数は無意味であるとまで述べている。PuのEh-pHダイアグラムを図2-17に示す⁽⁶⁶⁾が、 PuO_2 (Pu(Ⅳ))はきわめて難溶性であり、地表面や表層水あるいは浅層地下水環境下では大部分のPuは PuO_2 として安定であるが、一部溶解した PuO_2 は、Rai⁽⁶⁶⁾によれば $\text{PuO}_2 = \text{PuO}_2^+ + e^-$ の解離が進み溶液中ではPu(Ⅴ)価を中心とした酸化状態にあると予測される。一方、中西等⁽⁶⁸⁾が駿河湾の表層中のフォールアウトPuの多くが(Ⅴ+Ⅵ)価の酸化状態にあるのに対し、海底近傍と沈降した底質中Puの50%以上が(Ⅲ+Ⅳ)価の還元状態に変化しているとの報告は、フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の多くが元来(Ⅴ+Ⅵ)価を主体としたものであるとの傍証と考えられる。

放射性廃棄物に含まれるPuの酸化状態は、高レベルガラス固化体の場合1100～1150℃で酸化物としてガラス中に取込まれることからフォールアウトに近い酸化状態にあると考えられる。他方中・低レベル再処理廃棄物に含まれるPuは種々の酸化状態に

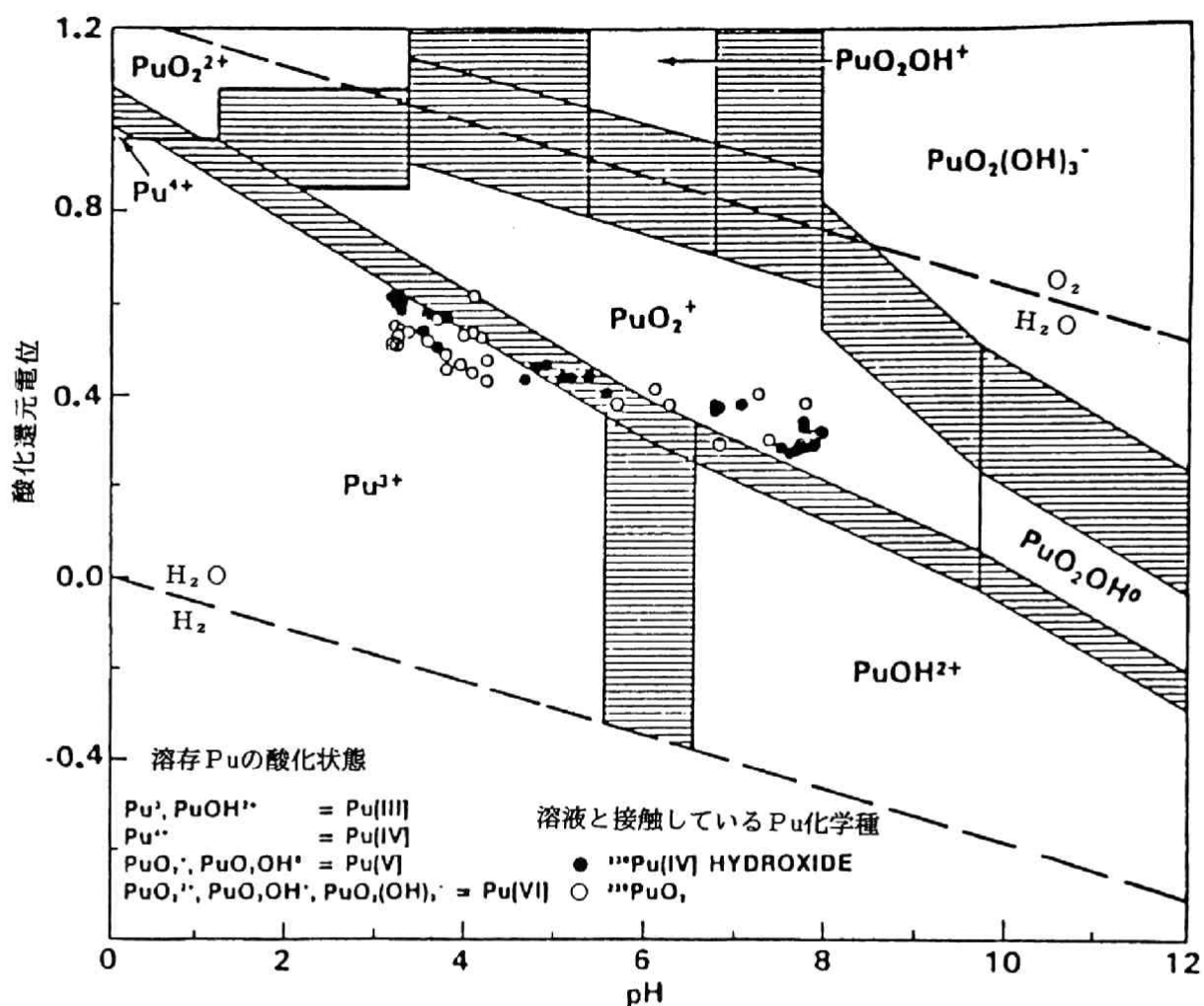


図 2-17 25°Cでの溶存プルトニウムの化学形と pH-Eh ダイアグラム
 (影の部分は、熱力学データの誤差のために各プルトニウム
 化学種間での安定領域の境界が幅を持つことを表わしている)
 (文献(66)より引用)

あるものと思われるが、ちなみにウインズケールの再処理工場よりアイルランド海へ放
 流されている廃液中の Pu の 90% は、(Ⅲ+Ⅳ) 価の酸化状態にあることが、Nelson 等
 (67) によって報告されている。また Markey Flats の処分場のトレンチ浸出液中に含ま
 れる Pu の大部分が (Ⅲ+Ⅳ) 価である (69, 70) と報告されている。これらのことは、低・
 中レベル廃棄物に含まれる Pu の大部分が (Ⅲ+Ⅳ) 価であることを示唆している。
 Nelson (67) は、(Ⅲ+Ⅳ) 価の Pu の分配係数は (Ⅴ+Ⅵ) 価の Pu のそれに比べ 1,000
 倍大きいと報告しておりこのことは Santschi (61) 等によって行われた フォールアウト

$^{239+240}\text{Pu}$ (V+VI) とトレーサーとして用いた ^{236}Pu (III+IV) の海水中から底質による除去の実験で ^{236}Pu の方が早く除去された結果、あるいは、著者が行った試験結果⁽⁷¹⁾からも確認されている。さらに (V+VI) 価 Pu が (III+IV) 価よりも移動性が高いことは、前述の Maxey Flats に関する報告中でも触れられている⁽⁷⁰⁾。

以上の結果から、フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ (V+VI) を利用して実環境条件下で土壌に対する吸着特性を調べることは、低レベル再処理廃棄物のように (III+IV) 価の酸化状態を主体とする Pu の吸着を検討する場合には、安全側の評価を与える結果となる。

一方高レベル廃棄物のようにフォールアウトと酸化状態が同一で同様の化学形態を有する場合には、土壌への吸着性をフォールアウトを用いて調べることになんら問題がないものと考えられる。従って、フォールアウト Pu を活用して土壌への吸着性を検討評価することは、きわめて有効な手段だと思われる。

(5) 結論

長崎市西山での長崎原爆の際に放出されたフォールアウト・プルトニウムの地中分布調査を通じて以下の結論を得た。

- 1) 西山のシルト質ローム層土中に吸着保持されている $^{239+240}\text{Pu}$ の97%は、1945年8月9日の長崎原爆の際に放出されたものである。その降下蓄積量は、最大5.91pCi/cm²でグローバルフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の0.16pCi/cm²の約37倍であった。
- 2) 降下したフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の大部分は、地表からの30～50cm深さまでに90～97%以上が吸着されていた。残り3～10%は、基岩盤上にまで極低濃度で拡散しており、地下水中にもその一部が溶出している。このことは、わずかではあるが移動性の高いプルトニウムの存在を示唆している。
- 3) フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の地中での移動速度は、降水浸透速度の1/2000～1/2500程度で、約1mm/yであった。推定した遅延係数を基にフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の分配係数を推定すると、860～1000ml/gであり、 Pu (IV価)を用いてバッチ試験によって測定した値よりも約1桁小さな結果となった。

2.3.4 実環境条件下でのフォールアウト ^{90}Sr , ^{137}Cs の地中移動

放射性廃棄物の陸地処分の安全性を論議するには、放射性核種の地中移動速度を把握することが重要である。その際、核種の移動速度をフィールドで直接測定できれば、そ

れは最も説得力のあるデータとして有効である。この観点から 2.3.3節では、長崎西山地区において長崎原爆のフォールアウト核種（プルトニウム）の地中分布を調査することによりフィールドでの核種地中移動速度を実測したことを述べた⁽⁷²⁻⁷⁴⁾。ここでは、さらに長崎原爆の際に放出された ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の約40年間の地中移動距離を測定し、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の移動速度と土壌の分配係数を評価する。 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の評価の場合は、プルトニウムの評価とは異なり、まず、1945年の長崎原爆に起因するローカルフォールアウト降下量と1945年以降のグローバルフォールアウト（1946～1962年に米ソを中心に行われた大気圏内核実験によって放出された放射性降下物）の降下量を把握することが重要である。

(1) フォールアウト降下履歴の推定

概説

古い地層や厚い堆積層の中に見出される化石からその当時の気候、堆積年代、堆積状況を知る上で貴重な情報が得られるのは周知の事実である。一方、1960年代になると南極やグリーンランドの氷床の中にフォールアウトの降下履歴が、きれいに成層化して残されていることが明らかになってきた⁽⁷⁵⁻⁷⁹⁾。このことは氷床に限らず、ゆるやかに水中懸濁粒子が堆積する海底や湖底でも同様に過去のフォールアウトの情報が沈降堆積層の中に保存されることになる。Krishinaswami等⁽⁸⁰⁻⁸⁴⁾は、この考え方を基に天然のフォールアウト核種である ^{210}Pb の湖底堆積層内での放射崩壊による濃度変化減衰曲線を基に湖での底質堆積速度を求めた。また Koide、Goldberg 等⁽⁸⁵⁻⁸⁷⁾は、 ^{210}Pb だけでなく $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ の減衰曲線より海洋底での底質堆積速度を求めると同時に、底質堆積層内でのフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{137}Cs 分布についても研究を行ったが、降下履歴を推定するまでには至らなかった。一方、Schreiber⁽¹⁷⁾は核実験によって大気中に放出された β 核種フォールアウトの降下履歴記録およびポー川河口における底質堆積物中の堆積深さと β 放射能濃度分布プロフィールを比較することにより土砂の堆積速度を求めた。

本章では、 ^{210}Pb 法および ^{137}Cs の原爆ピークおよびグローバル・ピークを基に堆積深度に対応する時間尺度を作り、各年代間の底質中 ^{137}Cs ならびに ^{90}Sr の濃度分布を測定し ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の降下履歴の推定を試みる。

1) 西山・小ヶ倉貯水池底質コア内の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 分布

フォールアウト降下履歴データを得る目的で西山貯水池コアを1982年、1984年の2回、さらに小ヶ倉貯水池で1984年に底質コアを採取した。コア採取地点を図2-18に示す。

① コア採取法

貯水池深度の大きい場所では、未攪乱採泥器（1982年採取）あるいは潜水夫によって底質表面を乱さないようにアクリルパイプ（ $\phi=81\text{mm}$ ）を挿入、底質が落下しないように底部には底質の落下防止用塩化ビニール製のふたを上部にはゴムせんをし、垂直に保ったまま船上に引上げ試料を乱さないように実験室へ持ち返った。また浅い場所では、直接パイプ（ $\phi=52\text{mm}$ ）を静かに押し込み引き上げ試料が乱されないよう上下をビニールで密封し実験室へ持ち返った。

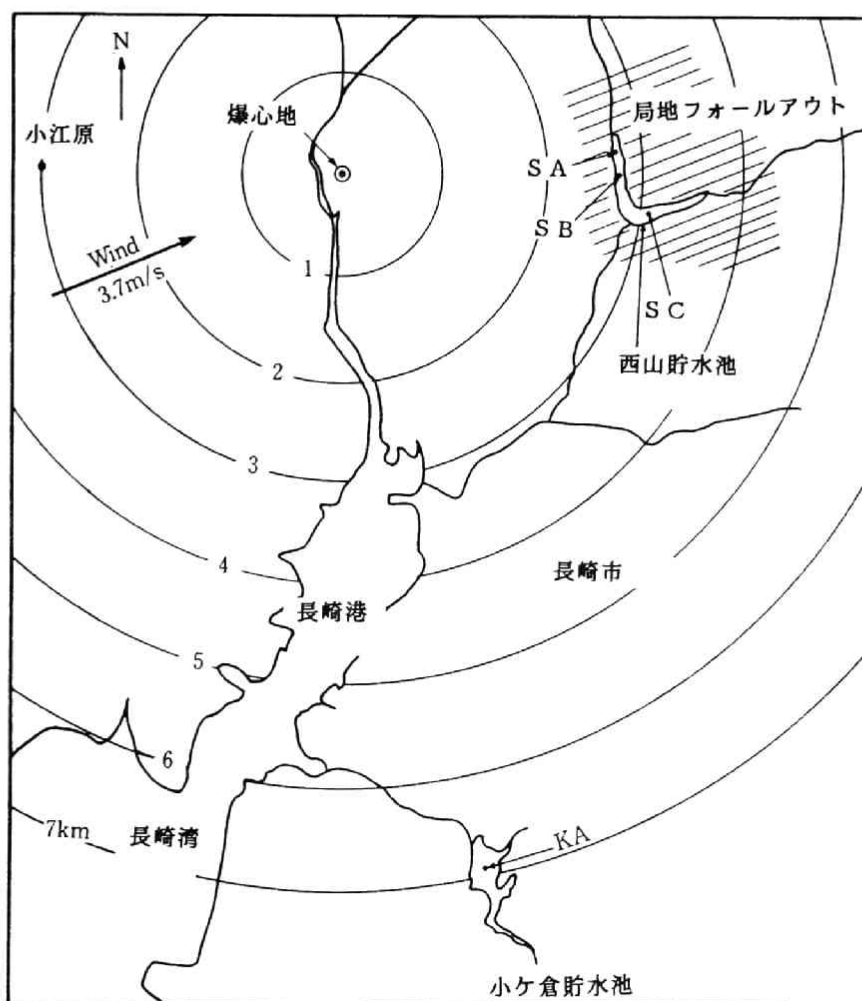


図2-18 貯水池底質コア採取地点

② 測定試料の調整

採取したコアを乱さないように冷凍室にて凍結させ所定間隔（1～2 cm）で切断し湿潤重量測定の後、110℃での乾燥後重量と含水量を測定し、乳鉢にて細かく砕き放射能測定試料とした。

③ 放射能測定

^{210}Pb ＊、 ^{137}Cs については乾燥した底質 5.0～25.0gを直径81mmの亚克力容器に高さ2.5～12.5mmとなるように充填し、ピュアーGeタイプ波高分析器にて86,400 sec測定し放射能濃度を決定した。 ^{90}Sr 測定は、科技庁分析マニュアルに準じた。化学分離の後、 ^{90}Sr の測定は、2週間の放置の後放射平衡に達した ^{90}Y をミルキングにより分離し、 ^{90}Y の放射能強度を低バックグラウンドβ線計測にて放射能濃度を決定した。

④ ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 濃度と堆積深度

西山貯水池コア（SA、SB、SC）および小ヶ倉貯水池コア（KA）の深度別底質の各核種濃度を表 2-7に整理する。その結果比較的良好な状態でフォールアウト降下履歴が残されていることが判った。SA、SB、SCコアでは原爆フォールアウトピークおよびグローバルフォールアウトピークが見られる。一方、KAコアでは、大きなグローバルフォールアウトピークが見られるが原爆ピークはきわめて小さく、小ヶ倉貯水池周辺では長崎原爆のローカル・フォールアウトの影響は殆ど無視できると推測された。

* ^{210}Pb 濃度は、乾燥底質14gを内径81mm厚さ1mmの亚克力容器に均一につめ、パラフィルムおよびアクリルのふたで完全に密封し ^{226}Ra ^{210}Pb が放射平衡に達するに十分な期間2ヶ月以上保存した。その後保存試料をマルチ遮蔽体によってバックグラウンドを下げた低バックグラウンドピュアーGe半導体γ線波高分析器（NaI 相対効率 33%）を用いたγ線スペクトロメトリーによって ^{210}Pb より放出される46.5KeVのγ線を86,400秒計測した。なお、 ^{210}Pb に対する本計測器の絶対効率は、同一ジオメトリーを持つように作成した ^{210}Pb スタンダード試料を使って決定し、その値は0.48%であった。

表 2-7 西山貯水池および小ヶ倉貯水池底質内での
 ^{210}Pb , ^{90}Sr と ^{137}Cs 鉛直濃度分布

(西山貯水池 S A コアー)

深 度 (cm)	底質重量 (g/cm ³)	^{210}Pb (pCi/g)	^{137}Cs (pCi/g)	^{90}Sr (pCi/g)
0 ~ 3	0.706	0.23	0.322	—
3 ~ 6	1.054	0.30	0.384	—
6 ~ 9	1.071	0.28	0.367	—
9 ~ 12	0.943	0.28	0.369	—
12 ~ 15	1.040	0.29	0.286	—
15 ~ 18	0.932	0.23	0.276	—
18 ~ 21	0.942	0.27	0.218	—
21 ~ 24	1.012	0.14	0.204	—
24 ~ 27	0.642	0.19	0.185	—
27 ~ 30	0.612	0.16	0.221	—
30 ~ 33	1.153	0.31	0.307	—
33 ~ 36	0.930	0.32	0.319	—
36 ~ 39	0.721	0.26	0.271	—
39 ~ 42	0.770	0.25	0.252	—
42 ~ 45	0.832	0.26	0.449	—
45 ~ 48	0.662	0.35	0.070	—
48 ~ 51	1.025	0.33	0.450	—
51 ~ 54	0.689	0.23	0.658	—
54 ~ 57	0.930	0.20	0.072	—
57 ~ 60	0.961	0.18	ND	—
60 ~ 63	1.026	0.22	ND	—
63 ~ 66	0.800	0.20	ND	—
66 ~ 69	1.062	0.18	ND	—
69 ~ 72	0.901	0.14	ND	—
72 ~ 75	0.732	0.13	ND	—
75 ~ 78	0.943	0.18	ND	—
78 ~ 81	0.963	0.17	ND	—
81 ~ 84	0.834	0.13	ND	—
84 ~ 87	1.004	0.11	ND	—
87 ~ 90	1.133	0.11	ND	—

ND : 検出限界以下

NA : 分析せず

検出限界 ^{210}Pb : 0.14 pCi/g
 ^{137}Cs : 0.07 pCi/g
 ^{90}Sr : 0.01 pCi/g

(西山貯水池S Bコア)

深 度 (cm)	底質重量 (g/cm)	^{210}Pb (pCi/g)	^{137}Cs (pCi/g)	^{90}Sr (pCi/g)
0 ~ 1.5	0.776	0.455	0.341	0.071
1.5~ 3.5	0.786	0.380	0.374	0.071
3.5~ 5.5	0.840	0.801	0.426	0.092
5.5~ 7.5	0.942	0.423	0.419	0.092
7.5~ 9.5	0.770	0.858	0.462	0.099
9.5~11.5	0.775	2.013	0.528	0.107
11.5~13.5	0.654	1.655	0.455	0.123
13.5~15.5	0.882	1.597	0.478	0.079
15.5~17.5	0.862	1.457	0.395	0.076
17.5~19.5	0.808	0.902	0.478	0.078
19.5~21.5	0.777	1.182	0.542	0.079
21.5~22.5	0.946	0.722	0.627	0.096
22.5~23.5	0.841	0.867	0.717	0.096
23.5~24.5	0.902	0.340	0.822	0.087
24.5~25.5	0.976	0.335	0.878	0.124
25.5~26.5	0.954	0.728	0.895	0.083
26.5~27.5	0.910	0.359	1.172	0.092
27.5~28.5	0.905	0.322	1.468	0.104
28.5~29.5	1.220	0.267	1.243	0.080
29.5~31.5	0.990	0.122	0.637	0.092
31.5~33.5	1.278	0.065	0.258	0.093
33.5~35.5	0.784	ND	ND	0.081
35.5~37.5	1.105	ND	ND	0.091
37.5~39.5	1.278	ND	ND	0.091
39.5~41.5	0.982	ND	ND	0.094
41.5~43.5	0.700	ND	ND	0.094

ND : 検出限界以下

NA : 分析せず

検出限界 ^{210}Pb : 0.14 pCi/g ^{137}Cs : 0.07 pCi/g ^{90}Sr : 0.01 pCi/g

(西山貯水池S Cコアー)

深 度 (cm)	底質重量 (g/cm ³)	²¹⁰ Pb (pCi/g)	¹³⁷ Cs (pCi/g)	⁹⁰ Sr (pCi/g)
0～2	0.548	0.627	0.371	0.22
2～4	0.508	ND	0.336	ND
4～6	0.452	1.941	0.459	ND
6～8	0.324	1.426	0.621	0.25
8～10	0.368	3.145	0.707	0.19
10～12	0.393	2.083	1.201	NA
12～14	0.470	1.679	1.237	0.36
14～16	0.559	1.886	1.085	NA
16～18	0.443	0.975	1.194	NA
18～20	0.408	1.608	1.685	0.19
20～22	0.434	1.709	1.468	0.25
22～24	0.475	1.428	1.015	0.51
24～26	0.420	1.262	1.470	0.49
26～28	0.625	0.440	1.006	ND
28～30	0.562	0.738	0.278	ND
30～32	0.527	ND	0.091	ND
32～34	0.639	0.529	ND	ND

ND : 検出限界以下

NA : 分析せず

検出限界 ²¹⁰Pb : 0.14 pCi/g¹³⁷Cs : 0.07 pCi/g⁹⁰Sr : 0.01 pCi/g

(小ヶ倉貯水池K Aコアー)

深 度 (cm)	底質重量 (g/cm ³)	²¹⁰ Pb (pCi/g)	¹³⁷ Cs (pCi/g)	⁹⁰ Sr (pCi/g)
0～2	0.497	1.28	0.477	0.14
2～4	0.514	1.35	0.537	0.21
4～6	0.626	3.59	1.153	0.13
6～8	0.613	3.96	1.252	0.14
8～10	0.495	2.68	1.272	0.15
10～12	0.551	2.80	1.450	0.16
12～14	0.393	3.23	2.147	0.17
14～16	0.503	3.12	2.405	0.21
16～18	0.516	3.41	1.372	0.12
18～20	0.480	2.51	0.596	0.07
20～22	0.433	3.31	0.338	0.10
22～24	0.512	2.35	ND	0.07
24～26	0.510	2.08	ND	0.05
26～28	0.536	1.61	ND	ND
28～30	0.498	1.56	ND	ND
30～32	0.429	1.87	ND	ND
32～34	0.444	1.94	ND	ND
34～36	0.477	1.24	ND	ND
36～38	0.475	2.18	ND	ND

ND：検出限界以下

NA：分析せず

検出限界 ²¹⁰Pb：0.14 pCi/g
¹³⁷Cs：0.07 pCi/g
⁹⁰Sr：0.01 pCi/g

2) フォールアウト¹³⁷Cs、⁹⁰Srの降下履歴

前節で述べた底質コア・データを基に²¹⁰Pbと¹³⁷Csの単位面積・単位時間当りの降下量 (pCi/cm²・yr) を計算し、この²¹⁰Pbと¹³⁷Cs降下フラックスと堆積深度の関係を求める。堆積深度と²¹⁰Pb降下フラックスの関係は次式

$$C(p_b)/C_o(p_b) = \exp(-\lambda \cdot t) \quad \dots\dots\dots (2-44)$$

$$t = h' / \bar{A} \quad (\text{or} \quad t = W / \omega) \quad \dots\dots\dots (2-45)$$

ここに、C(p_b) : 堆積層 l の深さでの²¹⁰Pbの放射能 (dpm/g)

C_o(p_b) : 堆積層表面での²¹⁰Pbの放射能 (dpm/g)

λ : ²¹⁰Pbの崩壊定数 (y⁻¹)

t : 堆積経過時間 (y)

h' or W : 堆積層深さ (cm) あるいは h' までの堆積底質重量 (g)

\bar{A} or ω : 平均堆積速度 (cm/y) あるいは底質沈降フラックス (g/cm²・y)

で表わされ、片対数紙上で²¹⁰Pb濃度と堆積深度をプロットし得られる直線の傾きより平均堆積速度を推定することができる。また、¹³⁷Csの降下フラックスと堆積深度をグラフ上にプロットし、原爆ピークあるいはグローバルピークの位置を基に底質堆積速度を推定することが可能である。

これら²¹⁰Pb法と¹³⁷Csピーク法から求めた西山貯水池SA、SB、SC地点での底質堆積速度 \bar{A} は、西山貯水池のB地点を除いてほぼ一致した。すなわち、SA、SB、SC地点で、²¹⁰Pb法と¹³⁷Csピーク法によって測定した堆積速度は、各々、1.23cm/yと1.34cm/y、0.35cm/yと0.74cm/y、0.66cm/yと0.73cm/yであった。これらを基に堆積速度は西山貯水池深部(水深30m)で $\bar{A}=0.7\sim0.8$ (cm/y)、小河川流入部(水深2~10m)で $\bar{A}=0.8\sim1.34$ (cm/y)、小ヶ倉貯水池深部(水深20m)で $\bar{A}=0.7\sim0.8$ (cm/y)と推定した。²¹⁰Pb法と¹³⁷Csピークより推定した堆積速度がほぼ一致したことから、フォールアウト降下履歴を推定するためのタイム・スケールは、¹³⁷Csピーク法により求めた堆積速度で底質の堆積深度を除すことにより各深度の堆積年代を計るタイム・スケールを作成した。また、そのタイム・スケールには、東京で観測されたグローバルフォールアウト¹³⁷Csの降下年と降下量フラックス分布を同じ時間スケールで描き重ね合わせるにより、底質コア中でのグローバルピークの位置の目安とした。このようにして描いた西

山貯水池底質コア S A、S B、S C と小ヶ倉貯水池底質コア K A 内に残されている原爆およびグローバルフォールアウトの降下履歴を図2-19～図2-22に示す。

西山貯水池 S A、S B、S C のコアデータの中には、グローバル・フォールアウトと原爆フォールアウトの影響が同時に残されている。しかし小ヶ倉貯水池 K A のコアデータには、グローバルフォールアウトの降下履歴のみが比較的良好な状態で保存されていることがわかった。S A、S B、S C コアデータと K A コアデータを比較することにより西山周辺に降下した原爆フォールアウトとグローバルフォールアウトの降下量を分離し概ね評価すると(原爆フォールアウト)/(グローバルフォールアウト)≒1で、1985年3月現在、底質中に含まれる ^{137}Cs の50%は、1945年8月に降下した原爆によるもので、残りの50%が1957年～1984年に降下したグローバル・フォールアウトによるものであると推定した。その際 S A、S B コアの中では、原爆フォールアウトの ^{137}Cs は、グローバルフォールアウト成分とは分離されて存在するので降下年代によって区別した。また S C コアの中では、原爆とグローバルフォールアウト成分は、降下年代だけでは区別できないので、グローバル ^{137}Cs のみが存在する K A コアと比較することによって、原爆フォールアウト ^{137}Cs とグローバル ^{137}Cs 成分とを区別した(図2-23～2-25参照)。一方、グローバルフォールアウトの降下の激しかった時期(1963～1972年)に札幌、秋田、仙台、東京、大阪、福岡での ^{137}Cs の観測結果から推定する⁽⁸⁸⁻⁸⁹⁾と、北緯33°～38°の間での ^{137}Cs の降下量はほぼ同程度であり、ほぼ東京の値でもって代表できる⁽⁹⁰⁾。これら観測結果をもとに、もっともフォールアウト降下データが整っている東京で観測されたグローバルフォールアウト ^{137}Cs 降下量を基に ^{137}Cs の放射崩壊を考慮して積算した全降下量は概ね13.5 pCi/cm²で、西山陸上土壌中の ^{137}Cs 全蓄積量平均27 pCi/cm²の1/2である。また、長崎において原爆フォールアウトの影響が少なかった小江原地区(0～30cm深度)で ^{137}Cs 蓄積量は12.7 pCi/cm²で、西山の値のほぼ1/2であることからここでの推定は、ほぼ妥当な結果である。

一方 ^{90}Sr の降下履歴について検討するには、底質中では ^{90}Sr が ^{137}Cs に比べて移動性が高く、底質堆積層内に履歴が良好な状態で保存されているか甚だ疑問である。それは、S B、S C、K A コアの ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 濃度分布からも推察できる(表2-7参照)。

^{90}Sr の降下履歴の推定は、 ^{137}Cs の降下量を基に以下の手順で行った。

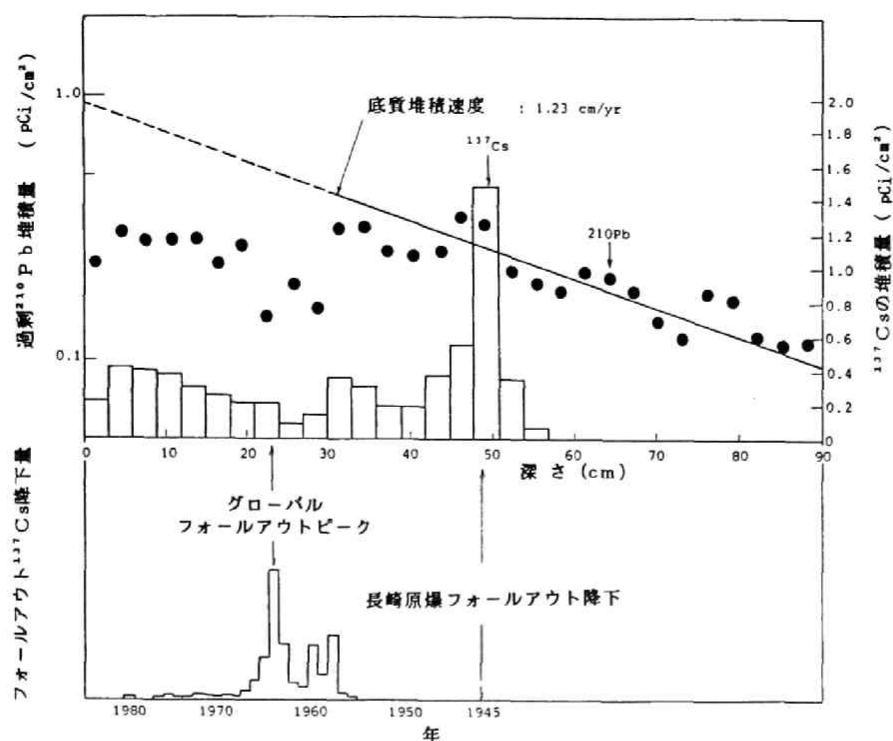


図 2-19 西山貯水池底質コア-S A内のフォールアウト ^{137}Cs と ^{210}Pb の鉛直分布と東京で観測されたグローバルフォールアウト ^{137}Cs の降下履歴記録との比較

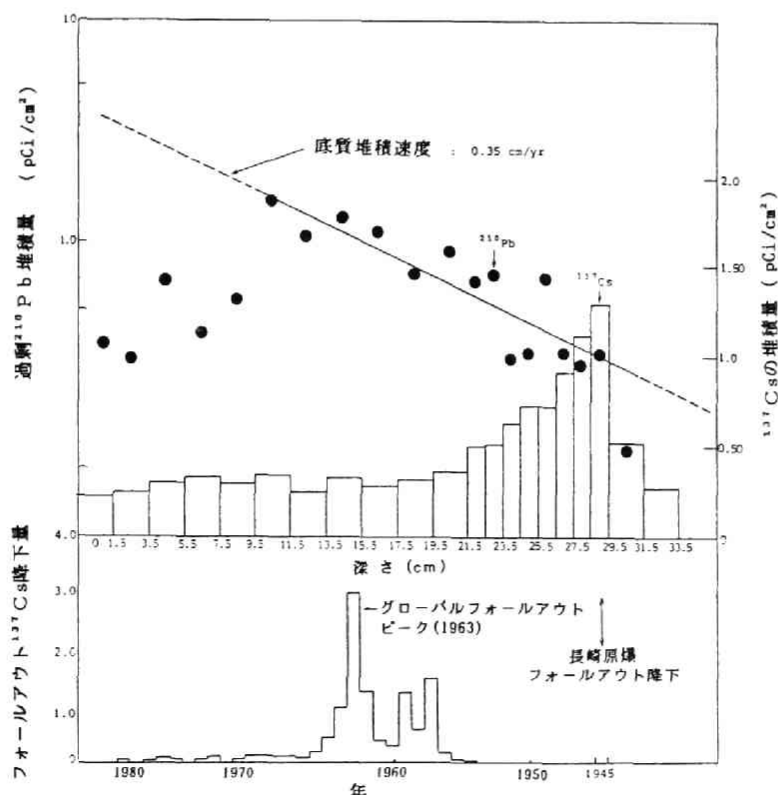


図 2-20 西山貯水池底質コア-S B内のフォールアウト ^{137}Cs と ^{210}Pb の鉛直分布と東京で観測されたグローバルフォールアウト ^{137}Cs の降下履歴記録との比較

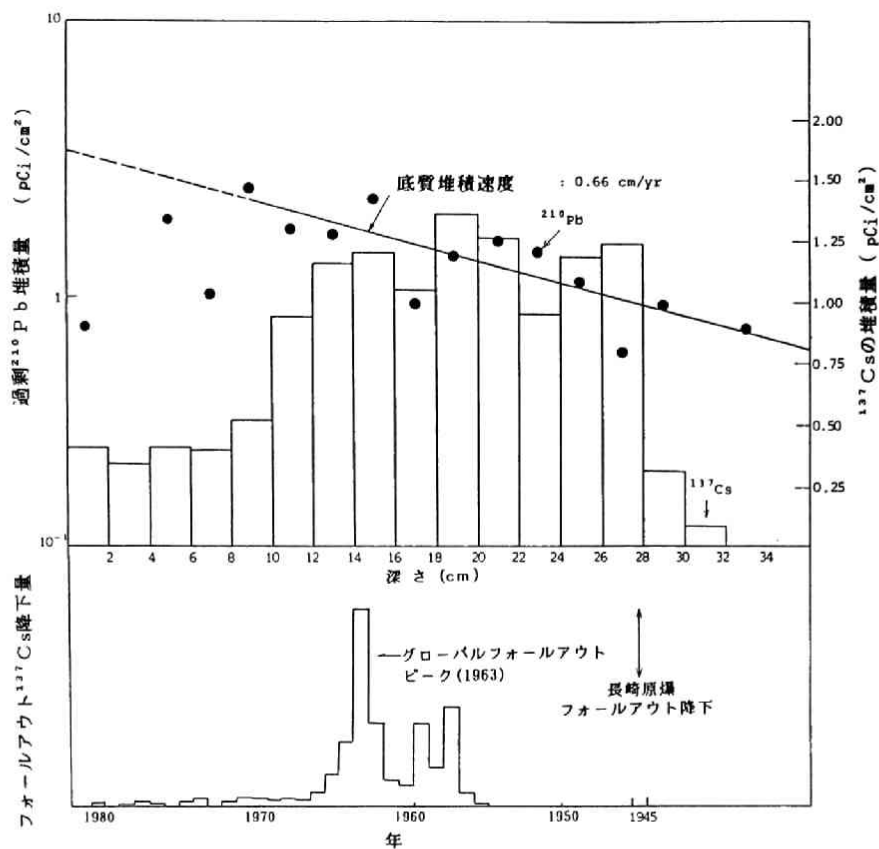


図 2-21 西山貯水池底質コア-SC内のフォールアウト ^{137}Cs と ^{210}Pb の鉛直分布と東京で観測されたグローバルフォールアウト ^{137}Cs の降下履歴記録との比較

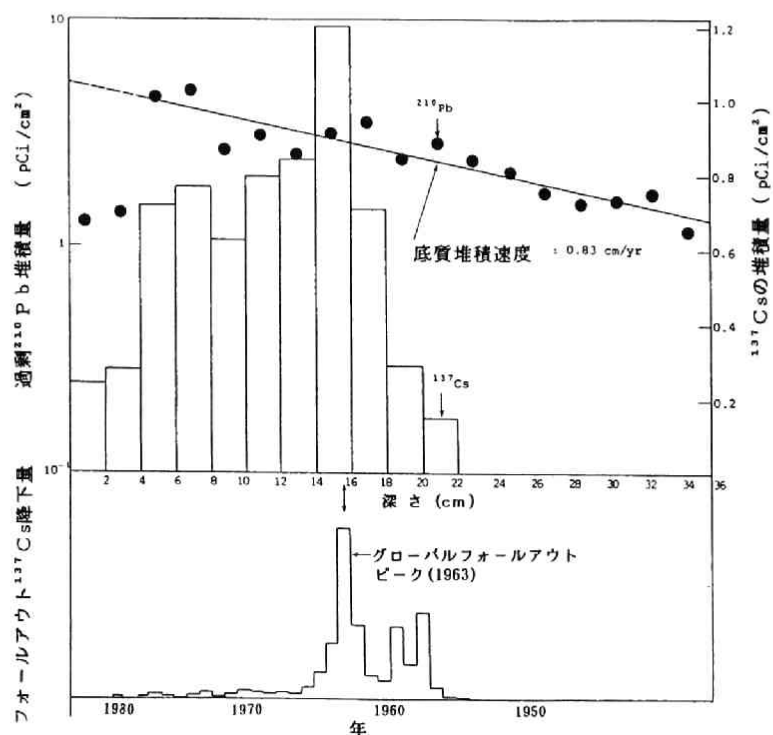


図 2-22 小ヶ倉貯水池底質コア-KA内のフォールアウト ^{137}Cs と ^{210}Pb の鉛直分布と東京で観測されたグローバルフォールアウト ^{137}Cs の降下履歴記録との比較

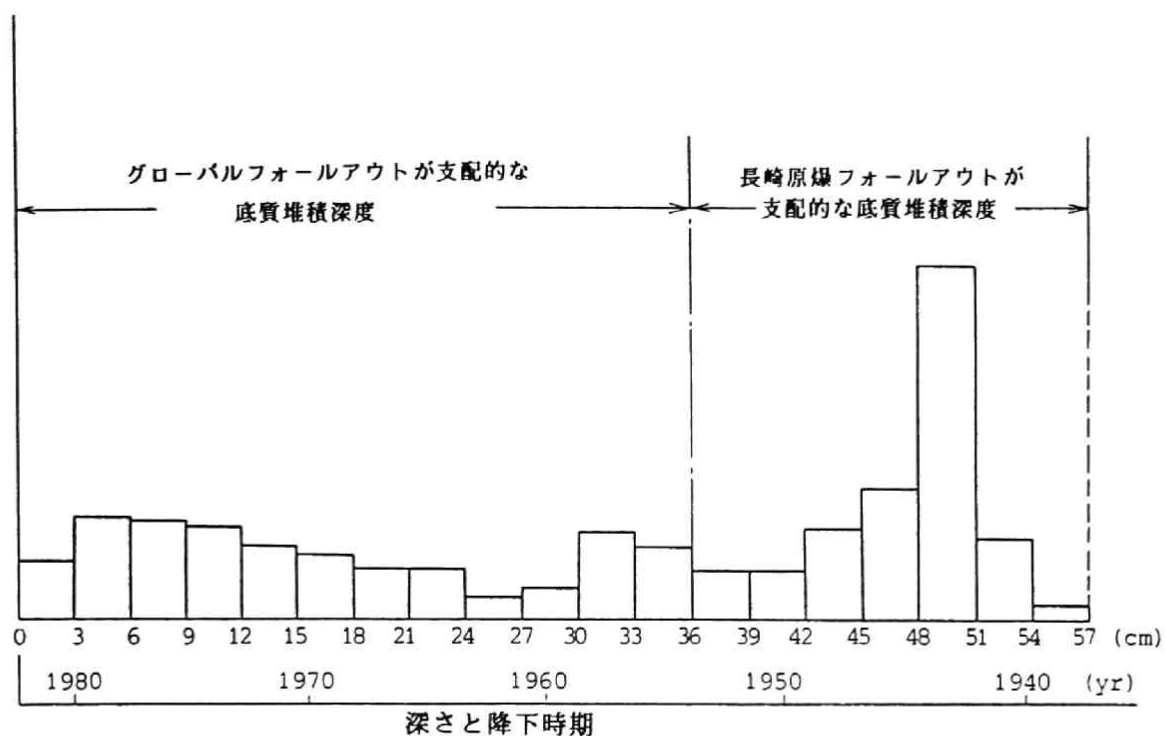


図 2-23 ^{137}Cs を使った西山貯水池底質コア-SA 内での長崎原爆局地フォールアウトとグローバルフォールアウトの降下影響範囲の区分

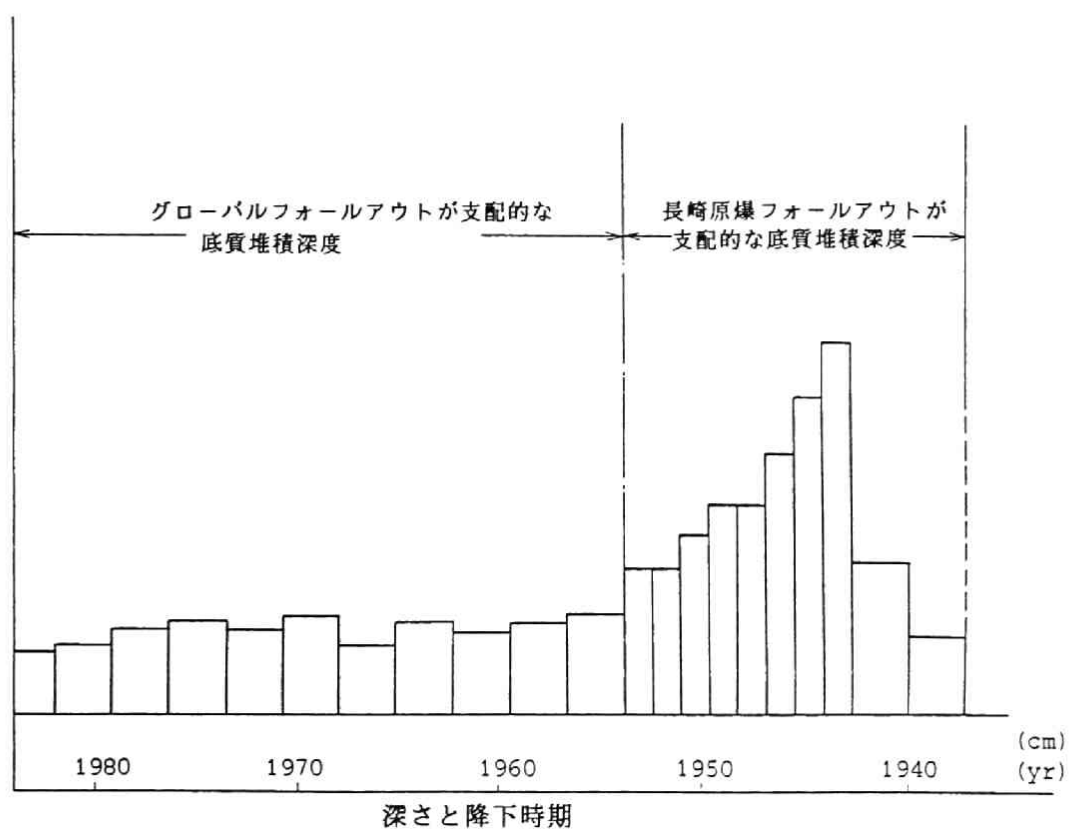


図 2-24 ^{137}Cs を使った西山貯水池底質コア-SB 内での長崎原爆局地フォールアウトとグローバルフォールアウトの降下影響範囲の区分

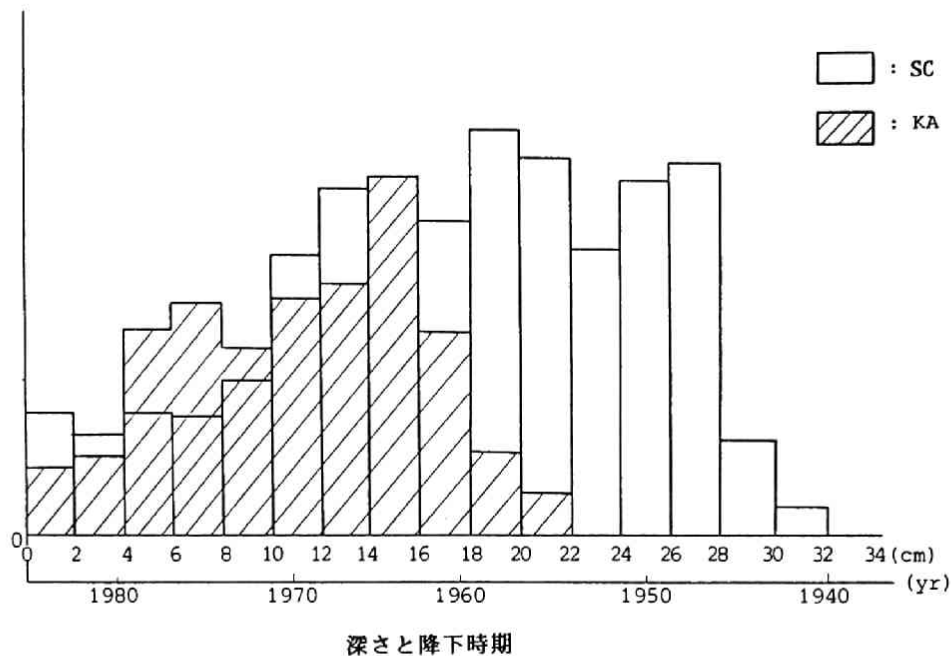


図 2-25

小ヶ倉貯水池底質コア-KAとの比較による西山貯水池底質コア-SC内の長崎
原爆局地フォールアウトとグローバルフォールアウトの影響範囲の区分
(KAとSCコア内のグローバルフォールアウトピークの高さを一致させて比較)

- ① 原爆によって放出された $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ の比は ^{239}Pu の 速中性子による核分裂収率⁽⁹¹⁾を持つものと仮定すると

$$\left(\frac{^{90}\text{Sr}}{^{137}\text{Cs}} \right)_A = 0.324$$

となる。1945年の ^{90}Sr 降下量 $(^{90}\text{Sr})_A$ は、

$$(^{90}\text{Sr})_A = \frac{1}{2} (^{137}\text{Cs})_T \times \frac{1}{e^{-0.02297 \cdot t_0}} \times 0.324 \quad \dots\dots\dots (2-46)$$

ここに、 $(^{137}\text{Cs})_T$: 西山の単位面積当りに降下した全 ^{137}Cs 量 (Ci/cm^2)

t_0 : 原爆後の経過年 (y)

- ② グローバルフォールアウト ^{90}Sr の降下量は、 $(^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs})$ 比としては、三宅らの観測により我国では、平均 $(^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs})_G = 0.370$ (1959~1963年) が報告されている⁽⁹²⁾。この値を用いて グローバルフォールアウト ^{90}Sr 降下量 $(^{90}\text{Sr})_G$ を次式で推定する。

$$(^{90}\text{Sr})_G = \frac{1}{2} (^{137}\text{Cs})_T \cdot \sum_i f_i \cdot \frac{1}{e^{-0.02297 \cdot t_i}} \times 0.37 \quad \dots\dots\dots (2-47)$$

ここに、 f_i ：該当する年に降ったフォールアウト ^{137}Cs の全グローバルフォールアウトに占める割合。

t_i ：グローバルフォールアウト降下後の経過年（ y ）

以上の手順に従って西山地区に降下した ^{137}Cs 量をベースに原爆およびグローバルフォールアウト ^{90}Sr の降下量を求め表2-8に示す。ただし、ここでは議論を簡単にするために、グローバルフォールアウトは、すべて1963年に全量が降下したものと仮定した。また、地表から基盤岩上部までに含まれる ^{90}Sr の全量を計算し、実測値と比較すると表2-8に示すようにほぼ一致する。この結果からも降下履歴の評価がほぼ妥当な結果であり、ここで用いた手法によってフォールアウトの降下履歴を概略推定できることが明らかとなった。

(2) 西山土壌内での ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の分布と移動速度

1) ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の地中鉛直分布

^{137}Cs と ^{90}Sr の鉛直分布を西山NA、NBホールについて図2-26に整理する。 ^{137}Cs と ^{90}Sr の放射能濃度測定は、底質の場合と同様の方法によった。測定結果を見ると、すでに述べた $^{239+240}\text{Pu}$ の分布⁽⁷²⁻⁷⁴⁾と同様、地表面近傍（地表より高々40cm深さ）にほぼ全吸着量の～90%程度が吸着されていることが明らかとなった。 ^{137}Cs と ^{90}Sr の分布を比較すると地表近傍の高濃度吸着帯の中では、 ^{90}Sr の方が ^{137}Cs より移動性が高く、このことは、過去に報告されている観測結果に一致する⁽⁹³⁻⁹⁴⁾。 2) ^{137}Cs と ^{90}Sr の遅延係数、分配係数および地中移動速度の推定

核種の通気層内での移動は、次式

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D' \cdot \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - U' \cdot \frac{\partial C}{\partial z} - \lambda C \quad \dots\dots\dots (2-48)$$

ここに、 $D' = D/R$

$U' = U/R$

D ；水の拡散係数

U ；降水の浸透速度

R ；通気層遅延係数

表 2-8 西山地区に蓄積されているフォールアウト ^{90}Sr 量

(1945年長崎原爆による局地フォールアウト ^{90}Sr と
核実験によるグローバルフォールアウト ^{90}Sr の寄与)

降下時期 (年)	NA サイトでの ^{90}Sr 降下量 (pCi/cm^2)		NB サイトでの ^{90}Sr 降下量 (pCi/cm^2)	
	計算値	実測値	計算値	実測値
1945	11.13*	(-)	16.5*	(-)
1963	8.41**	(-)	12.8**	(-)
総計	9.69***	9.95***	13.9***	12.2***

* 1945年の値
** 1963年の値
*** 1985年の値

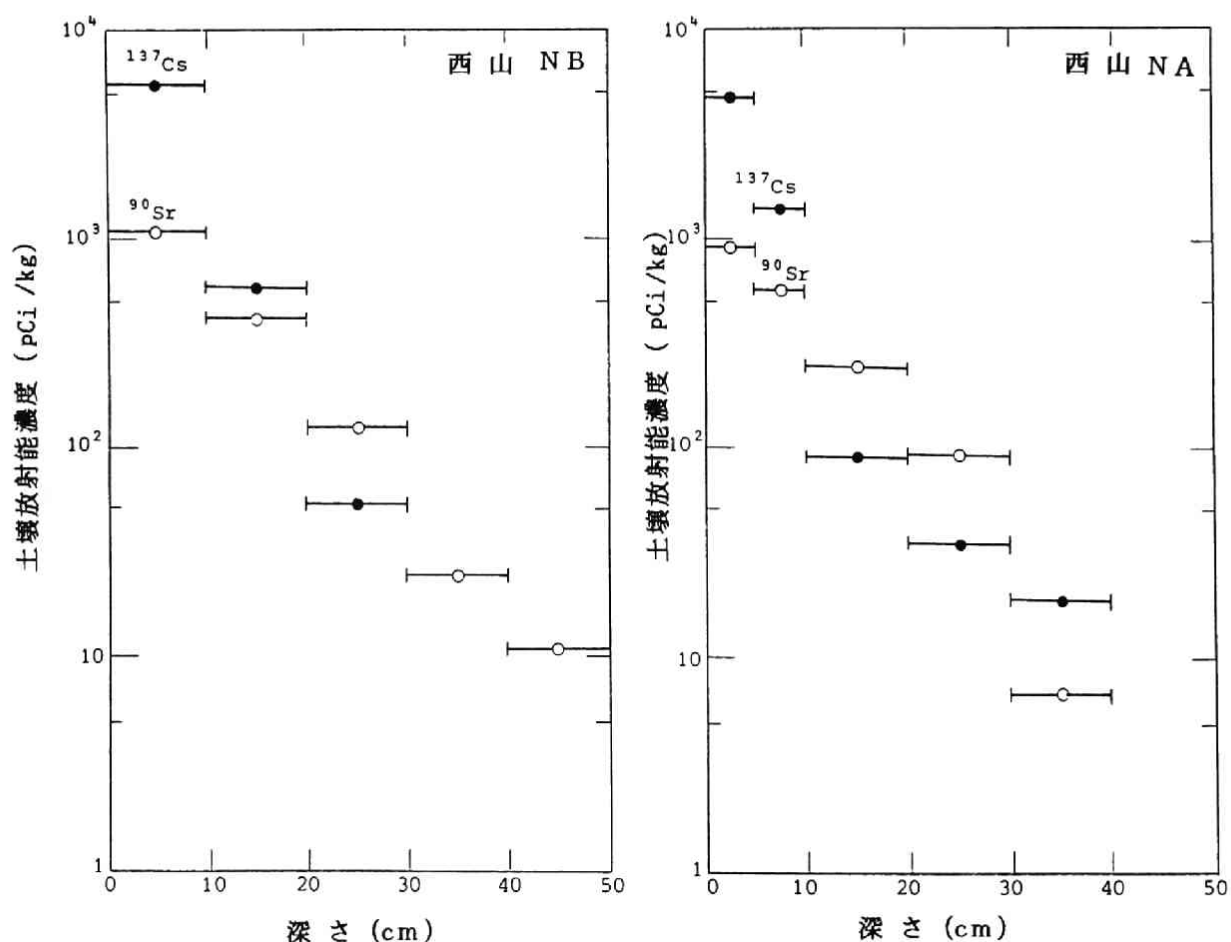


図 2-26 西山土壌コア-NA, NB内の ^{90}Sr と ^{137}Cs の吸着濃度鉛直分布

によって評価する。(2-48)式を地表面核種濃度 C_0 が放射崩壊によって減衰する境界

条件

$$\begin{aligned} z > 0, \quad t = 0 & \quad \text{で } C = 0 \\ z = 0, \quad t > 0 & \quad \text{で } C = C_0 e^{-\lambda t} \dots\dots\dots (2-49) \\ z = \infty, \quad t > 0 & \quad \text{で } C = 0 \end{aligned}$$

のもとに解くと、解析解は次式(2-50)で与えられる。

$$\begin{aligned} C(Z, t) = \frac{C_0}{2} \exp(-\lambda t) \{ \exp\left(\frac{U' \cdot Z}{D'}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{Z + U' t}{2\sqrt{D' t}}\right) \\ + \operatorname{erfc}\left(\frac{Z - U' t}{2\sqrt{D' t}}\right) \} \dots\dots\dots (2-50) \end{aligned}$$

この解析に際し、原爆フォールアウト成分については1945年8月に全量が降下したものと考え、グローバルフォールアウト成分については、1963年に全量が降下したものと考える。原爆フォールアウトとグローバルフォールアウト成分は、各々独立に通気層中を移動し、地中での ^{137}Cs と ^{90}Sr の各核種の濃度は、原爆フォールアウト成分とグローバルフォールアウト成分ごとに(2-50)式で解析した結果に各フォールアウト成分の降下量で重みをつけた濃度の重ね合せによって評価されるものと仮定した。

遅延係数(R)をパラメータとして、全吸着量に対する任意の深さ x までの ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の吸着量との比 $\int_0^x C(z, t) dz / \int_0^\infty C(z, t) dz$ と深さの関係を 図2-27～2-28 に実測データと共に示す。この図より推測すると ^{137}Cs と ^{90}Sr の遅延係数としては、各々 $R_{\text{Cs}} = 2500 \sim 3500$ 、 $R_{\text{Sr}} = 600 \sim 1000$ を得た。このことは、西山シルト系ローム通気層における降水浸透速度が概ね 250cm/y であることを考慮すると、 ^{137}Cs と ^{90}Sr の移動速度としては各々 $\sim 1.0\text{mm/y}$ 、 4.2mm/y となる。またその時の ^{137}Cs と ^{90}Sr の分配係数を次式

$$R = 1 + \frac{1-f}{f \cdot s} \cdot \rho \cdot k_d \dots\dots\dots (2-51)$$

と先の遅延係数値および実測データ ($f = 0.64$ $s = 0.70$ $\rho = 2.59$ および $f = 0.75$ $s = 0.51$ $\rho = 2.69$) を用いて k_{dCs} 、 k_{dSr} を求めると $k_{\text{dCs}} = 1200 \sim 2000$ (ml/g) $k_{\text{dSr}} = 300 \sim 560$ (ml/g) となる。また、 ^{137}Cs と ^{90}Sr 溶液を用いて バッチ法にてNA, NB地点で採取した同一土壌と 地下水を用いて pH中性領域で k_d 値を測定すると $k_{\text{dCs}} = 400 \sim 800$ (ml/g)、 $k_{\text{dSr}} = 150 \sim 200$ (ml/g) であった。フォールアウト吸着データを基に推定した k_d は、バッチ法で求めたものよりも大きくCs、Srともに約3倍大きな値であった。この原因としては、次のように考えられる。フォールアウト ^{90}Sr 、 ^{137}Cs

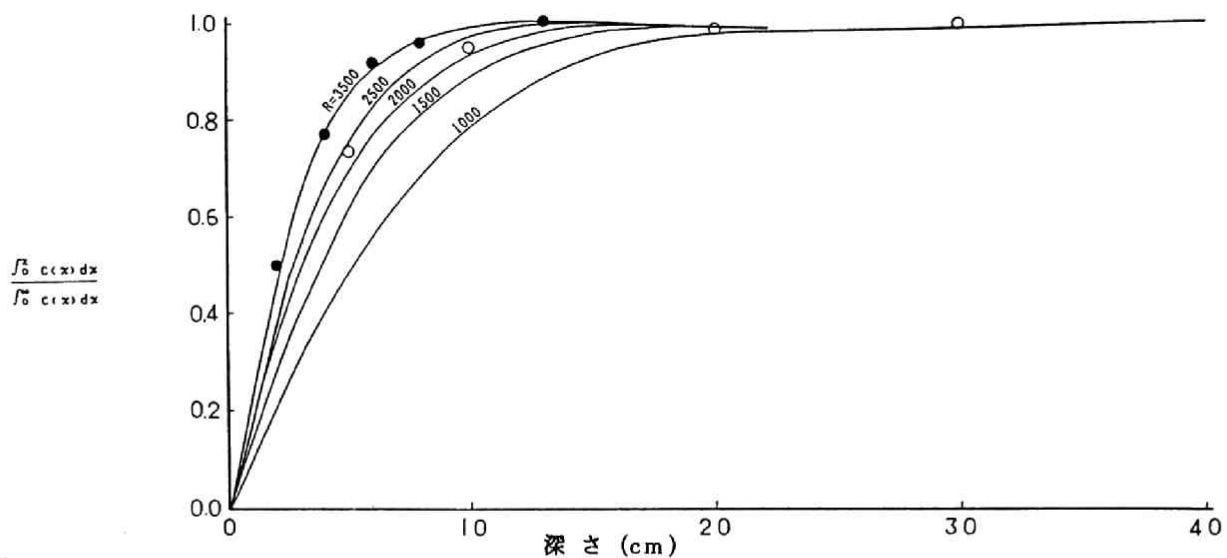


図 2-27 西山シルト質ロームの ^{137}Cs 遅延係数推定のための ^{137}Cs 積算吸着量と理論積算吸着曲線 (○コア-NAの実測値, ●コア-NBの実測値)

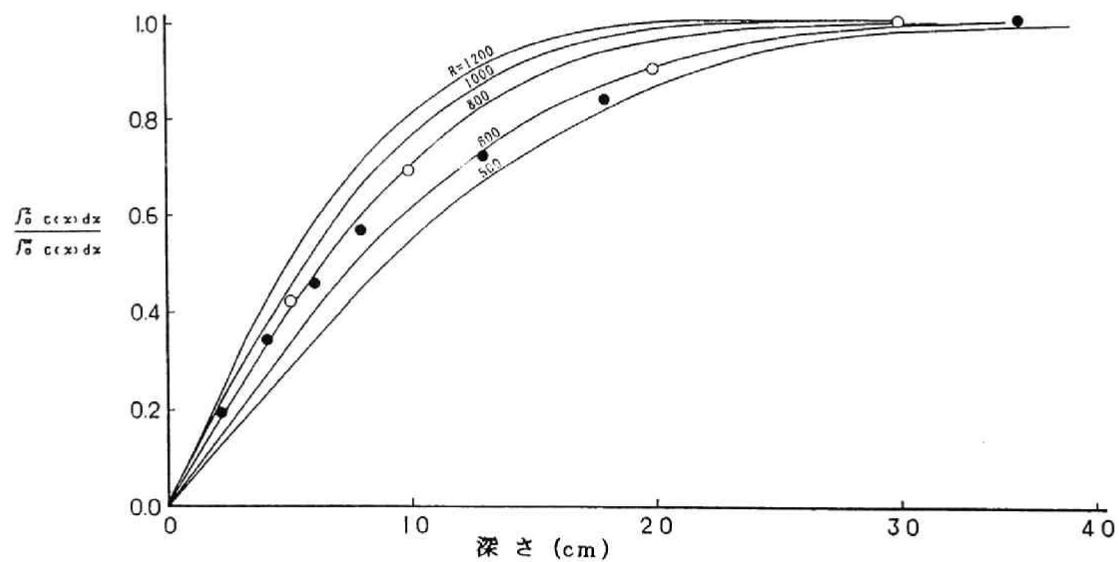


図 2-28 西山シルト質ロームの ^{90}Sr 遅延係数推定のための ^{90}Sr 積算吸着量と理論積算吸着曲線 (○コア-NAの実測値, ●コア-NBの実測値)

の大部分は、酸化物 (SrO , Cs_2O) として存在し⁽⁹⁵⁻⁹⁶⁾、降水あるいは 土壌水中ではすみやかに溶解し Sr^{2+} 、 Cs^+ イオン (図2-1 pH-Ehダイアグラム参照) として存在するものと考えられている。この傍証としては フォールアウト ^{90}Sr 、 ^{137}Cs が 降水中で Sr^{2+} 、 Cs^+ イオンとして存在することは、環境放射能の分析⁽⁹⁷⁾⁽⁹⁸⁾において 降水中に含まれる ^{90}Sr 、 ^{137}Cs は、Na 型 陽イオン交換樹脂に直接水を通して溶存する ^{90}Sr 、 ^{137}Cs を捕捉できることから理解される。これらの点を考慮するとフォールアウト起源の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs とトレーサー室内試験で用いた ^{90}Sr 、 ^{137}Cs も、いずれも土壌水中では、イオンとして存在しており、二者の間で化学形態の違いは考えにくい。このことからフォールアウトを用いて測定した分配係数とバッチ法によってトレーサーを用いて測定した分配係数の大きさの違いは、従来の分配係数測定実験では短期間 (～数週間程度) の吸着実験、主にイオン交換反応を基にしているのに対し、今回の測定では40年間という長期の吸着の結果、イオン交換反応以外の土壌粒子を取り巻くマンガン酸化物等への不可逆吸着および鉱物化反応のように長期間にゆっくりと進行する反応の増加⁽⁹⁹⁾の影響を無視できないことによるものと考えられる。しかしながらこの原因については今後十分に検討を加えていく必要がある。

一方、Pu の場合には、フォールアウト起源の PuO_2 が存在する降水や土壌中では、図2-17の pH-Ehダイアグラムからも推測できるように、水相中では、 $\text{PuO}_2^+(\text{Pu(V)})$ としてPu は存在しているものと考えられる⁽⁶⁶⁾。しかしながら、トレーサー試験に用いたPu は Pu(IV) イオンあるいは Pu(IV) ポリマーとして液相中に存在しており、Nelson 等⁽⁶⁷⁾によれば、 Pu(IV) の分配係数は Pu(V) のそれに比べると約 10^3 倍大きいと報告されている。従って、40年間という吸着時間の影響を考慮しても、フォールアウトPu (V) と トレーサ試験に用いたPu(IV)では、Puの酸化状態が異なることによる影響の方がはるかに大きいと言える。

(3) 結論

長崎原爆フォールアウトおよびグローバル・フォールアウト ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の地中移動について長崎西山の通気層 (シルト質ローム) を対象に調査検討し以下の結論を得た。

- 1) 長崎原爆およびグローバル・フォールアウトの降下履歴は、貯水池底質の鉛直コアーの ^{137}Cs 濃度を分析することにより推定が可能である。また、この手法を用いれば貯水池底質の堆積速度を測定することが出来る。

- 2) 西山地区の土壤中に残されている全 ^{137}Cs の約50%は原爆（1945年）によるものであり、残り50%はグローバル・フォールアウトによるものである。
- 3) ^{90}Sr の降下履歴については、 ^{137}Cs の降下履歴を基に 原爆およびグローバル・フォールアウトの $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ の比を用いて推定することが可能であり、46%が原爆フォールアウトであると推定された。
- 4) ^{137}Cs と ^{90}Sr の 西山シルト系ローム層内での移動速度は、控え目に見積っても降水浸透速度（ $250\text{cm}/\text{yr}$ ）の各々 $1/2500$ （ $0.1\text{cm}/\text{yr}$ ）、 $1/600$ （ $0.42/\text{yr}$ ）であった。
また、この値を基に 西山シルト系ローム土に対する ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の分配係数を概算すると $K_{dcs}=1200$ （ ml/g ）, $K_{dsr}=300$ （ ml/g ）程度であり、実験室で ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 溶液を用いてバッチ法にて測定した分配係数値に比べ Cs 、 Sr ともに3倍大きな値であった。

2.4 まとめ

本章の2.2 節では、通気層（不飽和層）における放射性核種移動の理論について研究の発展に沿って解説した。フィールドでの通気層の土壤水分量が土壤が均質であれば時間的、空間的にも一定できわめて安定しているという多くの観測結果を考慮すると帯水層での核種移動理論からの拡張理論は、その取扱いが簡便なことから概略の核種移動評価には、きわめて有効な理論と言えよう。不飽和浸透を基礎とした通気層での核種移動理論は、通気層での水分量を圧力の関数で表わすことにより通気層・帯水層を連続して取扱うことが可能となり今日では、最も一般的な核種移動の理論となっている。多成分流れモデルを基礎とした理論では、通気層での土壤水の移動能によって水を区分することによって精度良く通気層での核種移動を評価できるようになった。しかしながら、モデルが複雑となり、個々のパラメータの物理的意味が曖昧となる懸念もある。

2.3節では、自然条件下で存在する フォールアウト核種（ ^3H 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr ）を活用して地下水（降水）および放射性核種の地中での移動実態を観測した。

2.3.2 では、降水中に含まれる ^3H （ HTO ）の濃度履歴が通気層（不飽和層）内に保存されていることがわかった。通気層内の降水浸透は、流れはピストン流と仮定し蒸発散を考慮した押出し流れモデル（Displacement flow Model）で解析が可能であり、長崎西山地区での降水浸透速度は年間 $2\sim 3\text{ m}/\text{y}$ との結果を得た。この結果通気層内での降水浸透は、

概ねピストン流であるとの結論を得た。2.3.3 では、1945年8月9日の長崎原爆の際に放出されたフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の長崎西山地区のシルト質ローム層内での40年間にわたる再分布を観測し、通気層内での $^{239+240}\text{Pu}$ の遅延係数を求めた。その値は、降水の浸透速度の1/2000～1/2500で $^{239+240}\text{Pu}$ の地中移動速度は、1～1.25mm/yであった。この遅延係数を基に $^{239+240}\text{Pu}$ の分配係数を求めると、 $k_{d\text{Pu}}=860\sim 1000\text{ l/g}$ であり、この値は、 Pu(IV) を用いてパッチ法で測定した分配係数よりも約1桁小さなものであった。このことは、陸地処分の安全評価上は、フォールアウトプルトニウムを用いて測定した分配係数を用いることは、安全側の評価結果を与えることになるとの結論を得た。2.3.4 では、長崎原爆フォールアウトとグローバル・フォールアウトに含まれる ^{137}Cs と ^{90}Sr の西山地区の通気層内での濃度分布を基に ^{137}Cs と ^{90}Sr の遅延係数と分配係数を推定した。その際、フォールアウトと ^{137}Cs と ^{90}Sr の降下履歴の推定は、概ね貯水池の底質内に残されている鉛直濃度分布より可能である。測定された ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の遅延係数は、各々2500、600以上であり、分配係数は、 ^{137}Cs で1700～2500ml/g、 ^{90}Sr で430～740ml/gであった。特に、フォールアウトを活用して推定した分配係数は、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr をトレーサーとして同一土壌と地下水を用いて短期間のパッチ法によって測定した分配係数よりも2倍以上大きな値であった。このことは、分配係数の測定における吸着時間の長短が大きく影響し不可逆吸着の増加の寄与と考えられる。まだサンプリング方法や分析精度上解決すべき問題点は残るが、本節で提案した手法（①フィールドでの不飽和土壌（通気層）中での、降水浸透速度を、降水中に含まれるHTOをトレーサーとして追跡することにより、土壌水の浸透速度を推定する。②放射性核種の降下起源を推定し、降下から土壌コアを採取するまでの経過時間を決定する。③この経過時間中に通気層中での核種の浸透拡散の実態を未攪乱土壌コアを採取し、核種の濃度分布を実測する。④先に評価した土壌水の浸透を通気中での核種移行の起動力とした一次元移流拡散解析を行い、理論解と核種吸着濃度分布を比較することにより、核種の通気層中での移動速度を評価し、核種の土壌に対する分配係数を推定する。）を適用することにより、フォールアウトの降下履歴が不明な地点においても核種の地中移動速度ならびに土壌の分配係数をフィールド条件下で短期間に測定することが可能となる。このことは、言い替えるならば、フォールアウト核種（ ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 、 $^{239+240}\text{Pu}$ ）の活用を計ることにより、フィールドにおいて新たなトレーサー試験を行わずして直接核種の移動を測定することができることを意味している。

参考文献

- (1) 井上頼輝(1970)：放射性廃棄物の地中処分に関する基礎研究、京都大学博士学位論文
- (2) 井上頼輝・赤木文行(1971)：地下通気層における放射性核種の挙動について、土木学会第26回年次学術講演会講演集(Ⅱ)、633-634.
- (3) Buckingham, E. (1907) : Studies on Soil Moisture Movement, US. Dept. Agr. Bur., Soil Bul., No.38.
- (4) Yeh G. T. and Ward D. S.,(1979), "FEMWATER : A finite-element model of water flow through saturated-unsaturated porous media ", ORNL-5570, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge Tennessee.
- (5) Yeh G. T. and Ward D. S.,(1981),"FEMWASTE : A finite-element model of water transport through saturated-unsaturated porous media", ORNL-5601, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge Tennessee.
- (6) Genuchten M. T. V. and Wierenga P. J.,(1976)," Mass transfer studies in sorbing porous media I. analytical solutions ", Soil Sci. Soc. Am. J., 40, 473-480.
- (7) Coats K. H. and Smith B. D.,(1964)," Dead-end pore volume and dispersion in porous media ", Soc. Pet. Eng. J., 4, 73-84.
- (8) Deans H. H.,(1963)," A mathematical model for dispersion in the direction of flow in porous media ", Soc. pet. Eng. J., 3, 49-52.

- (9) Smedt F. D. and Wierenga P. J., (1979), " Mass transfer in porous media with immobile water ", J. Hydrol., 41, 59-67.
- (10) Smedt F. D. and Wierenga P. J., (1979), " A generalized solution for solute flow in soils with mobile and immobile water ", Water Resour. Res., 15, 1137-1141.
- (11) Skopp J., Gardner W. R. and Tyler E. J., (1981), " Solute movement in structured soils : Two-Region model with small interaction ", Soil Sci. Soc. AM J., 45, 837-842.
- (12) Robin M. J. L., Laryea K. B. and Elrick D. E., (1983), " Hydrodynamic dispersion during absorption of mater by soil 2. immobile water model ", J. Hydrol., 65, 333-348.
- (13) 森澤真輔、山岡泰治、井上頼輝 (1986)、"多成分流れモデルによる通気 層内物質移動の解析", 衛生工学研究論文集 Vol.22, 9-22.
- (14) 堀内将人、井上頼輝、颯田尚哉 (1986)、"クロムの不飽和土壌カラム内移動の解析" 土木学会第41回年次学術講演会 (Ⅱ)、745-746.
- (15) Fried S., Friedman A. M. and Hines J. J., 1976, " Distribution of Pu and Am at a Former Los Alamos Waste Disposal Site ", Transuranium in Natural Environments, National Technical Information Services, U. S. Dept. of Commerce, 5285 Port Royal Road, Springfield, VA 22161.
- (16) Fried S., Friedman A. M., Cohen D., Hines J. J. and Stricker R. G., 1978, " The migration of long-lived radioactive processing wastes in selected rocks", ANL-78-46 Argonne National Laboratory, Argonne, Illinois.

- (17) Schreiber B., I. Tassi Pelati, M. G. Mezzadri, and G. Matta, 1968, " Gross betaradioactivity in sediments of North Adriatic Sea : a possibility of evaluating the sedimentation rate ", Arch. Oceanogr. Limnol., Vol. 16, No1, 45-62.
- (18) J. Roger Mchenry, J. C. Ritchie and A. C. Gill, 1973, "Accumulation of Fallout Cesium 137 in Soils and Sediments in Selected Watersheds", Water Resour. Res., Vol. 9, 676-686.
- (19) Ritchie J. C., J. A. Spraberry and J. R. Mchenry, 1974, "Estimating Soil Erosion from the Redistribution of Fallout ^{137}Cs ", Soil. Sci. Soc. Amer. Proc., Vol. 38, 137-139.
- (20) Miyake Y, K., Saruhashi, Y. Katsuragi and T. Kanagawa, 1962, " Seasonal Variation of Radioactive Fallout", J. Deophys. Res., Vol. 67, No1, 189-193.
- (21) Miyake Y., t. Kanazawa, K. Saruhashi and Y. Katsuragi, 1976, " A Meteorological Study on the Local Changes in Radioactive Fallout", Pap. Met. Geophys., Vol. 27, No3 , 89-98.
- (22) Batterbee R. W., 1978, "Observations on the Recent History of Lough Neagh and Its Drainage Basin", Phil. Trans. Roy. Soc., London. Vol. 281, B 981, 318-342.
- (23) Smith J. N., and K. Ellis, " Transport mechanism for fallout ^{137}Cs to estu-arine sediments", IAEA-SM-248/118, 119-130.

- (24) Pennington W., R. S. Cambray and E. M. Fisher, 1973, "Observation on Lake Sediments Using Fallout ^{137}Cs as a Tracer", *Nature*, Vol. 242, 324-326.
- (25) Yamagata N., Okita T. and Kodaira K., 1963, "The runoff of fallout radiostrontium from a river and its application in hydrology", Radioisotopes in Hydrology, IAEA Symp. Proc., 417-423.
- (26) Miyake Y. and Tsubota H., 1963, "Estimation of the direct contribution of meteoric water to river waters by means of fall-out radiocaesium and radiostrontium", Radioisotopes in Hydrology, IAEA Symp. Proc., 425-431.
- (27) Pourbaix, M., 1974, Atlas of Electrochemical Equilibria in Aqueous Solutions, chap. IV pp.130 and chap. pp.151, National Association of Corrosion Engineers, 2400 West Loop South Houston, Texas 77027.
- (28) 作花済夫、境野照雄、高橋克明（編集），“ガラス構造とその研究方法、ガラスハンドブック第9編、”朝倉書店、905～913、(1987)
- (29) Zimmerman U., K. O. Munnich, W. Roether, and W. Kreute, 1966, "Tracers determine movement of soil moisture and evapotranspiration", *Science*, Vol. 152, pp.346～347.
- (30) Shimada, J., 1982, "Study of Soil water Movement in the Kanto Loam Formation Using Environmental Tritium as a Tracer", D. Sc. Dissertation, University of Tsukuba.
- (31) 「トリチウム」研究専門委員会報告書、1972, "トリチウムその性質と挙動", pp.4-13, (日本原子力学会)。

- (32) Libby, W. F. 1946, "(n,t)reaction of fast secondary neutrons on nitrogen",
Phys. Rev., 69, 671~672.
- (33) Kaufman, S., Libby, W. F. 1954, "The natural distribution of tritium",
Phys. Rev., 93, 1337-1344.
- (34) 木村重彦, 1971, "水中のトリチウムによる地下水の流れの研究(1)"
農業土木試験場報告 第9号, pp.1~43.
- (35) 嶋田純, 1978, "降水中のトリチウム濃度の時系列変化と降水の起源となる気団と
の関係" Radioisotopes. Vol. 27, No.12, 709-714.
- (36) Anderson, L. J. and Senel. T, 1974, "Six years' environmental tritium
profiles in the unsaturated and saturated zones, Gronhoj, Denmark", Isotope
Techniques in Groundwater Hydrology IAEA, Vienna, Vol. 1, pp.3~20.
- (37) Munnich, K. O., et al., 1967, "Dating of groundwater with tritium and ^{14}C ",
Conf. IAEA, pp.305~320.
- (38) Zimmermann, U., et al., 1967, "Soil-water, movement and evapotranspiration,
change in the isotopic composition of the water", Isotopes in Hydrology,
IAEA, Vienna, 567~585.
- (39) Schmalz, B. L., 1969, "Triated water distribution in unsaturated soil",
Soil Sci., Vol. 108, 43~47.
- (40) 木村重彦 1980, "土壌中の ^3H による垂直浸透機構の解析", 放出放射能による環境
汚染と被曝評価に関する研究, pp.1-6, 昭和53,54年度文部省科学研究費総合研究
(A) 課題番号 338029.

- (41) 梶根、田中、嶋田、前田、1977, “同位体による地下水資源の評価”
「水資源に関するシンポジウム」土木学会 pp47～52.
- (42) Kasturagi, Y., et al., 1983, “Tritium fallout in Tokyo”, Pap. Met. Geophys.,
Vol. 34, pp.21～23.
- (43) 科学技術庁, 1977, “トリチウム分析法”放射能測定法シリーズ9.
- (44) 梶根勇、1965, “Penmanの蒸発式の図的解法と水収支計算への応用について”
水利科学 No43, pp.61～68.
- (45) 馬原保典, “天然溶存ガスを用いた地下水調査法の提案”
電中研研究報告: U86048 昭和62年 5月
- (46) 阪上正信、1973, “天然・環境におけるPu諸同位体”, 化学, Vol.29, No8,
pp.645～648.
- (47) 高木仁三郎、1981, “プルトニウムの恐怖”, 岩波新書(黄版) 173, pp.113～116.
- (48) “高レベル・原子ゴミの地層処分”, 朝日新聞(朝刊) 12版, (1980, 12, 20).
- (49) R. R. Wilson, 1956, “Nuclear radiation at Hiroshima and Nagasaki”, Radiat.
Res., Vol. 4, pp.349～359.
- (50) Sakanoue, M., Tsuji, T., 1971, “Plutonium content of soil at Nagasaki”,
Nature, Vol.234 pp.92～93.
- (51) 岡島、法村、久保、1976, “長崎西山地区の残留放射能の調査研究”長崎医学、51
巻、pp.1401～42.

- (52) S. Okajima, 1976, "C. Dose estimation from residual and fallout radio-activity. 3. fallout in the Nagasaki-Nishiyama district-" J. Radiat Res., Supplment, pp.35~41.
- (53) 岡島俊三、相川由美子、島崎達也、久保剛、1980, "長崎西山地区におけるプルトニウム測定", 第23回日本放射線影響学会講演会講演集, 10PD 7, pp.102.
- (54) W. H. Langham, 1965, "Considerations of biospheric contamination by radioactive fallout", Radioactive fallout, Soils, Plants, Foods, Man., Chap. 1 (Edited by E. B. Fowler), Elsevier Publishing Co., Amsterdam, London, New-york, pp.3~18.
- (55) K. Hirose and Y. Sugimura, 1981, "Plutonium Content of River Water in Japan", Pap, Met. Geophys., Vol. 32, pp.301~305.
- (56) Y. Inoue and M. Sakanoue, 1970, "The determination of plutonium in soils samples" J. Rad. Res., Vol.11, pp.98~106.
- (57) Hardy, E. P., et al., 1973, "Global inventory and distribution of fallout Plutonium"., Nature, Vol. 241, pp.444~445.
- (58) Komura K., Sakanoue M. and Yamamoto M., 1984, "Determination of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ratio in environmental samples based on the measurement of Lx/ α -Ray activity ratio"., Health Phys., Vol.46, pp.1213~1219.
- (59) 科学技術庁, 1979, "プルトニウム分析法" 放射能測定シリーズ12.
- (60) Bortoli M. C. and P. Gaglione, 1969, "Natural and fallout radioactivity in the soil", Health phys., Vol.17, pp.701~710.

- (61) Santschi, P. H., et al., 1983, "The relative mobility of natural (Th, Pb and Po) and fallout (Pu, Am, Cs) radionuclides in the coastal marine environment : results from model ecosystems (MERL) and Narragansett Bay" *Geochim. Cosmochim. Acta* Vol. 47, pp.201~210.
- (62) Yamamoto M., K. Komura and M. Sakanoue, 1981, "Distribution and Characteristics of Pu and Am in soil", IAEA-SM-257/11p.
- (63) Yamato, A., et al., 1981, "Vertical distribution of fallout ^{241}Am and $^{239}+^{240}\text{Pu}$ in soil of undisturbed places in Ibaraki, Japan", IAEA-SM-257/13p.
- (64) Schöllenger C. J. and Simon, R. N., 1946, *Soil Sci.*, Vol.59, 13.
- (65) Sanchez A. L., Schell W. R. and Sibley T. H., 1981, "Distribution Coefficients for Radionuclides in Aquatic Environments", NUREG/CR-1852-V5.
- (66) Rai D., Serne R. J, and Swanson J.L., 1980, "Solution Species of Plutonium in the Environment", *J. Environ. Qual.*, Vol.9, 417~420.
- (67) Nelson, D. M., et al., 1978, "Oxidation state of plutonium in the Irish sea" *Nature*, Vol. 276, pp.599~601.
- (68) 中西、他, 1982, "海水中の $^{239}+^{240}\text{Pu}$ の鉛直濃度分布と存在形態"
第26回放射化学科学討論会予稿集(新潟)。
- (69) Cleveland, J. M., et al., 1981, "Characterization of plutonium in Maxey Flats radioactive trench leachates", *Science*, Vol. 212, pp.1506~1509.

- (70) Rees T. F. and Cleveland J. M., 1982, "Characterization of plutonium in waters at Maxey Flats, Kentucky, and near the Idaho Chemical Processing plant, Idaho", IAEA-SM-257/66, Environmental migration of long-lived radinuclides. IAEA Symp. Proc., 41-62.
- (71) Mahara Y. and Mastuzuru H., "Mobile and immobile plutonium in the ground-water environment", Water Res., (in contribution).
- (72) 馬原保典, 渡部直人, 1982, "フォールアウト (放射性降下物) を利用したプルトニウムの地中移動速度の検討", 電力中央研究所報告, 研究報告; 382024.
- (73) 馬原保典, 1984, "フォールアウト (放射性降下物) を利用したプルトニウムの地中移動の検討(その2)", 電力中央研究所報告, 研究報告; 383043.
- (74) Mahara Yasunori and Shojiro Miyahara, 1984, "Residual Plutonium Migration in Soil of Nagasaki", J. Geophys. Res., Vol. 89, No B9, 7931-7936.
- (75) Minoru Koide, Edward D. Goldberg, Michale M. Herron and Chester C. Langway. JR., 1977, "Transuranic depositional history in South Greenland firn layers", Nature, Vol.
- (76) Minoru Koide, Robert Michel, Edward D. Goldberg, Michael M. Herron, and Chester C. Langway. JR., 1979, "Depositional history of artificial radio-nuclides in the Ross ice shelf, Antarctica", Earth planet. Sci. Lett. Vol. 44, 205-223.
- (77) G. A. Cutter, K. W. Bruland and R. W. Risebrough, 1979, "Deposition and accumulation of plutonium isotopes in Antarctica", Nature, Vol. 279, 628-629.

- (78) J. F. Pinglot and M. Pourchet, 1981, "Gamma-ray bore-hole logging for Determining radioactivity fallout layers in snow", IAEA-SM-252/55 in Methods of Low-level Counting and Spectrometry, Symposium Berlin (west).
- (79) G. Crozaz, E. Picciotto and W. De Breuck, 1964, "Antarctic snow chronology with ^{210}Pb ", J. Geophys. Res., Vol. 69, No12, 2597-2604.
- (80) Krishnaswan, S., D. Lal, J. M. Martin and M. Meybeck, 1971, "Geochronology of lake sediments", Earth plant. Sci Lett., Vol.11, 407-414.
- (81) Tsaihwa J. Chow, Kenneth W. Bruland, Kathe Bertine, Andrew Soutar, Minoru Koide and E. D. Goldberg, 1973, "Lead pollution : Records in Southern California Coastal Sediments", Science, Vol. 181, 551-552.
- (82) E. Mastumoto and C. S. Wong, 1977, "Heavy metal sedimentatioin Sannich inlet measured with ^{210}Pb Technique", J. Geophys. Res., Vol. 82, 5477-5482.
- (83) Kazuko Megumi, 1978, "A problem in ^{210}Pb geochronology of sediments", Nature, Vol. 274, 885-887.
- (84) S. Krishnaswami, M. C. Monaghan, J. T. Westrich, J. T. Bennett and K. K. Turekian, 1984, "Chronologies of sedimentary Processes in sediments of the FOAM site, Long Island Sound, Connecticut", American J. Sci., Vol. 284, 706-733.
- (85) Minoru Koide, W. Bruland and E. D. Goldberg, 1973, "Th-228/Th-232 and Pb-210 geochronologies in marine and lake sediments", Geochim. Cosmochim. Acta., Vol. 37, 1171-1187.

- (86) Minoru Koide, E. D. Goldberg and V. F. Hodge, 1980, " ^{241}Pu and ^{241}Am in sediments from coastal basins off California and Mexico", *Earth planet. Sci. Lett.*, Vol. 48, 250-256.
- (87) Kenneth W. Bruland, M. Koide, C. Bowser and L. J. Maher, 1975, "Lead-210 and Pollen Geochronologies and Lake Superior Sediments", *Quaternary Res.* Vol. 5, 89-98.
- (88) 三宅康雄、葛城幸雄、金沢照子、1964、"放射性降下物の現状と将来" 科学, Vol. 34, 142-144.
- (89) Miyake Y., K. Saruhashi, Y. Katsuragi, T. Kanazawa and S. Tsunogai, 1963, "Deposition of Sr-90 and Cs-137 in Tokyo through the End of July 1963", *Pap. Met. Geophys.*, Vol. 14, 58-65.
- (90) 葛城幸雄、杉村行勇、1975, "日本における ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{238}Pu 降下量"、第18回放射能調査研究成果論文抄録集 (p.18~23) 科技厅
- (91) Seymour Katcoff, 1960, "Fission-Product Yields from Neutron-Inducted Fission", *Nucleonics*, Vol.18, No.11, 201-208.
- (92) Miyake, Y., K. Saruhashi, Y. Katsuragi and T. Kanazawa, 1965, "Radio-activity of dust and rain - The ratio of ^{137}Cs and ^{90}Sr in the radioactive fallout", *Proc. Int. Conf. on Cloud Physics, Tokyo, IAMAP*, 395-399.
- (93) E. P. Hardy, 1974, "Depth distribution of global fallout Sr-90, Cs-137, and Pu-239, 240 in sandy loam soil", *USAEC Rep. HASL-286*.

- (94) Harley J. H., 1980, "Plutonium in the environment : A review", J. Radiat. Res., Vol.21, 83-104.
- (95) Martell, E.A., 1959, "Atmospheric aspects of strontium-90 fallout, Science 129, No 3357, 1197-1206.
- (96) Fowler, E. B., 1965, Radioactive fallout, soils, plants, Foods Man, Elsevier Publishing Company.
- (97) 科学技術庁, 1974, "放射性ストロンチウム分析法" 放射能測定シリーズ2.
- (98) 科学技術庁, 1976, "放射性セシウム分析法" 放射能測定シリーズ3,
- (99) Killey R. W. D., 1982, "Long-term strontium-90 behavior in a sand aquifer", IAEA-AM-257/86p, Environmental migration of long-lived radionuclides, IAEA Symp. Proc., 811.

第3章 放射性核種の土壌への吸着に及ぼす環境条件の影響

3.1 概説

放射性核種の地中での移動を論ずる場合には、核種移動の原動力となる水の移動と共に核種の土壌への吸着が重要な因子である。核種の吸着特性は、土壌の種類と液相中の核種の存在形態によって異なる。とりわけ核種の存在形態は、核種を取巻く環境条件（pH、酸化還元電位、溶存イオン量、溶存物質、コロイド量、土壌中の微細粒子）によって左右される。例えば、米国の低レベル放射性廃棄物の陸地処分場からは、低濃度であるが ^{60}Co 、 ^{239}Pu が地下水中に検出され漏洩が確認されている⁽¹⁾⁻⁽¹¹⁾。この原因は、廃棄物中に存在するキレート剤（EDTA、TTA、DTPA）との錯体形成あるいは酸化還元状態の違いによると報告されている⁽¹⁾⁻⁽¹⁰⁾⁻⁽¹¹⁾。またカナダのチョーク・リバーの放射性廃棄物の陸地処分場では、 ^{137}Cs が土壌微細粒子に吸着して移動している⁽¹²⁾、一方ではフロント部分での ^{90}Sr の分配係数は、移動中のプルームの中心付近での ^{90}Sr の分配係数よりも1桁以上小さいとも報告されている⁽¹³⁾。本章3.2、3.3節では ^{60}Co 、 ^{239}Pu の土壌への吸着特性に影響を与える環境条件について室内実験を基に検討する。また3.4節では、フィールド調査より移動性の高いPu（mobile Plutonium）の存在を明らかにする。これら結果を基に土壌への核種吸着現象を検討する際に考慮しなければならない環境条件について整理する。

3.2 ^{60}Co の土壌への吸着性に関する実験的検討

3.2.1 研究の背景と目的

米国の商業用放射性廃棄物の陸地処分場からは、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{239}Pu にまじって ^{60}Co の漏洩の事実が数多く報告されている⁽¹⁴⁾⁻⁽¹⁹⁾。特に原子炉の運転に伴い発生する低レベル廃棄物の中に含まれる放射性核種としては、放射性コバルト（ ^{60}Co ）は量的にも、放射線学的危険性という点からも、きわめて重要な放射性核種である。事実、 ^{60}Co は高エネルギー γ 線を放出し比較的長い半減期（5.3年）を持つ危険な放射性核種である。しかも、コバルトは生物にとっては必要欠くべからざる元素（例えば、ビタミン12の成分元素）であり、このために、生物に利用されるならば、種々の臓器によって容易に蓄積される⁽²⁰⁾⁻⁽²¹⁾。

過去に多くの研究者が、地下水中の土壌と、あるいは淡水環境内の底質 (Sediments) とコバルトの相互反応について研究を行なっている⁽²²⁻²⁹⁾。TillerとHodgson⁽²²⁾は、コバルトの土壌への吸着特性は、pHと土壌内の鉱物種によって強く影響される（このことは本研究においても確認した）ことを発見した。Jenne⁽²⁴⁾とMeans⁽²⁵⁾は酸化状態で、コバルトが淡水中の土壌や底質中に含まれる水酸化マンガン上に選択的に吸着されることを報告している。地下水環境での ^{60}Co の移動に関する研究では、Means⁽²⁾はEDTAと結合している ^{60}Co は土壌によって吸着されることなく、地下水の移動に伴われて、地下水と同じ速度で移動していることを明らかにした。また、河川に排出された放射性コバルトは、酸化状態下では底質によってすばやく完全に捕えられる⁽³⁰⁾が、河川がフェノール等によって汚染されている場合には、放射性コバルトは、はるか下流にまで輸送されることが報告されている⁽³¹⁾。

海洋環境内での放射性コバルトと底質との相互反応についてはLowman⁽²⁰⁾は、海水中に浮遊している ^{60}Co の50%以上のものは、イオン状の ^{60}Co と言うよりは他の物質と結合した化学形を持っていると報告している。このことは、本研究の中で得られた海水中の放射性コバルトが環境条件の違いによっては非常に大きな移動能 (mobility) を持つ場合もあるという結果とも一致している。

本研究では、①淡水および海水と底質が作る系内での ^{60}Co の相互反応、特に好気条件と嫌気条件下での ^{60}Co の移動能の大きさと初期条件の違いによる ^{60}Co の吸着・脱離機構の違いについて実験的に検討した、②海水中と淡水中での ^{60}Co の移動能の大きさの違い、および脱離実験によって液相中に遊離した交換性 ^{60}Co と移動能の高い ^{60}Co 化学形態についても実験的に検討した。

3.2.2 実験方法

2種類の河川底質が、実験室での ^{60}Co 相互反応実験に用いられた。それらはこの研究の中では各々砂底質 (Sand Sediments) と有機底質 (Wood-chip Sediment) と呼ぶことにする。砂底質は、オタワ河の主流で採取された礫、中細砂、シルト、粘土の混合物で有効粒径 $620\mu\text{m}$ (対数標準偏差0.329) で、陽イオン交換容量*は、乾燥100g試料あたり0.67meqであった。

* 陽イオン交換容量はアンモニウムイオンとの交換により測定するSchöllengerとSimon (1946) の方法によった⁽³²⁾。

有機底質は、木屑、樹皮、シルト、粘土の混合物で、オタワ河北岸に位置したパルプ、製紙工場からの排水が流れ込む下流で採取した。その有機物含有率は、乾燥重量比6.39%であった。

これらの底質と水の間での ^{60}Co の相互反応を観察するため、乾燥重量で30gの底質と前もって決定した一定量(200~230ml)の水を、250ml褐色ガラス・ビンの中で十分混合した。淡水としては蒸留水を、海水としては人工海水を用いた。各ガラス・ビン内のpHは、0.1N KOHと0.1N HCl溶液のいずれかを加えながら前もって決められた値に調整した。実験条件としての嫌気条件は窒素ガスを吹き込むことにより水中溶存酸素を追出した後、パラフィルムでもって、しっかりと試料ビンを密封し、外部から新鮮な空気の侵入を防ぐことにより達成した。一方、好気条件は、褐色ビン内の混合物中に単純に空気を吹き込むことで達成した。

各試験ビンの内容物を、嫌気あるいは好気条件の下で2週間養生した後、 $^{60}\text{CoCl}_2$ の化学形態を持つ放射性コバルト(^{60}Co)を各試料ビン当たり0.05~0.5 μCi となるよう加えた。コバルトと底質間に分配平衡が見られるようにこれらのビンを1時間十分に加振した後、溶液相中に浮遊している微粒子を沈降させる目的で、30分間、1000rpmで遠心分離にかけた。嫌気条件下での試料は、暗室内に安置し、好気条件下での試料には、静かに空気を吹き込み続けた。

^{60}Co の水と底質との間での分布の時間的変化を調べるために2mlの水サンプルを用いて水相内の ^{60}Co の濃度を測定した。サンプルの放射能強度は(^{60}Co を試料に加えた後、3時間、24時間、3日、7日、14日、30日目に試料上澄み液を採取し)Nuclear Chicago 製、ディープ・ウェル型ガンマ線計測器を用いて測定した。

^{60}Co -底質-水系の中で、 ^{60}Co の底質への吸着性を調べる目的で、それまでの吸着実験条件を急激に変化させることによって ^{60}Co の移動能変化における可逆性を調べるために以下の実験を行なった。初めに30日間嫌気条件下で相互反応させた ^{60}Co を急激に好気条件下に置き、さらに30日間その好気条件下で水-底質系内で相互反応させた。一方、初めに30日間好気条件下で相互反応させた ^{60}Co を、逆に急激に嫌気条件下におき、次の30日間その嫌気条件で相互反応させた。新しい嫌気および好気条件を造り出すために純窒素および純酸素ガスを各々試料ビンの中に吹き込み続けた。水相にのこっている ^{60}Co の割合は、すでに述べた同じ手順で決定した。水中の ^{60}Co 放射能強度とpH

値は、養生条件の変化後1日、3日、7日、14日、30日目に測定した。

砂底質に対する ^{60}Co の吸着強度を見るために、 ^{60}Co と砂底質を30日間淡水系で好気および嫌気条件下で 各々相互反応させた後、 ^{60}Co を吸着している砂底質を好気条件および嫌気条件の人工海水中で18日間暴露養生し、 ^{60}Co の脱離状況を調べた。砂底質に吸着していた ^{60}Co は、乾土当り $0.015\text{--}0.017\mu\text{Ci/g}$ で、pH調整は行なわなかったが、pHはほぼ $5.0\text{--}7.0$ の範囲にあった。好気条件、嫌気条件の設定に当っては、実験容器内に超純窒素と酸素を連続的に吹込むことによって行った。この ^{60}Co の吸着・脱離実験条件を表3-1に示す。また、液相中の ^{60}Co 濃度は、実験開始後1、4、10、18日後に γ 線測定を行って決定した。

脱離実験によって海水中に脱離した ^{60}Co をここでは交換性 ^{60}Co と呼ぶこととし、交換性 ^{60}Co を含む溶液50mlを200mlビーカーに入れ、その中に内側に50ml蒸留水の入ったセロハン膜で作った袋を48時間 20°C でつるし、セロハン膜の内・外溶液中の ^{60}Co 放射能を測定し、膜を通過する ^{60}Co と膜を通過しない ^{60}Co とに分離した⁽³³⁻³⁴⁾。また比較のために $^{60}\text{CoCl}_2$ ストック溶液から新たにつくったイオン状 $^{60}\text{Co}^*$ を含む ^{60}Co 人工海水溶液についても同様にセロハン膜透析実験を行い膜の通過率を調べた。上記脱離試験によって得られた交換性 ^{60}Co を含む溶液と比較のために新たに作成した ^{60}Co 人工海水溶液の中で透析膜を通過した ^{60}Co は、ジチゾン・ベンゼン抽出法** (dithizone-benzene extraction)によってジチゾンと錯体を形成しベンゼン相に抽出されるものと抽出されずに液相に残るものとに分離した。さらに、交換性 ^{60}Co 溶液と ^{60}Co 人工海水溶液のうちで セロハン透析膜を通過した ^{60}Co を用いて、新たに砂底質との吸着実験を行い、含まれる ^{60}Co の吸着特性の違いなどについて調べた。また嫌気条件下で、 ^{60}Co —砂底質—人工海水系で生じ 液相に残った移動性の高い ^{60}Co についても比較のために

* 本研究では、セロハン膜を通過しジチゾン・ベンゼンによって液相より抽出され、かつ新鮮な砂底質上に吸着される ^{60}Co をイオン状 ^{60}Co と定義する。

** ここでは、 ^{60}Co を含む溶液 20mlに、ジチゾン(100ppm)ベンゼン溶液を加え、20分間激しく攪拌した後、水相と有機層の分離を行った。

^{60}Co がジチゾンと安定な錯体を形成し、芳香属炭化水素やケトン類に良く抽出されることは知られている⁽³⁵⁾。

新たに作った ^{60}Co 。人工海水溶液と共に同様のセロハン透析試験、ジチゾン・ベンゼン抽出および新鮮な砂底質への吸着試験を実施した。 ^{60}Co の化学形態を推定するために、行った実験の流れと非・交換性 ^{60}Co 、非・膜通過性 ^{60}Co と非・イオン状 ^{60}Co の分離フローを図 3-1に示す。なおすべての実験は、室温20℃の下で行なった。

表3-1 ^{60}Co の砂底質に対する吸着・脱離実験の際の酸化還元条件

実験ケース	淡水中での吸着実験条件	海水中での脱離実験条件
A	好 気 条 件	好 気 条 件
B	好 気 条 件	嫌 気 条 件
C	嫌 気 条 件	好 気 条 件
D	嫌 気 条 件	嫌 気 条 件

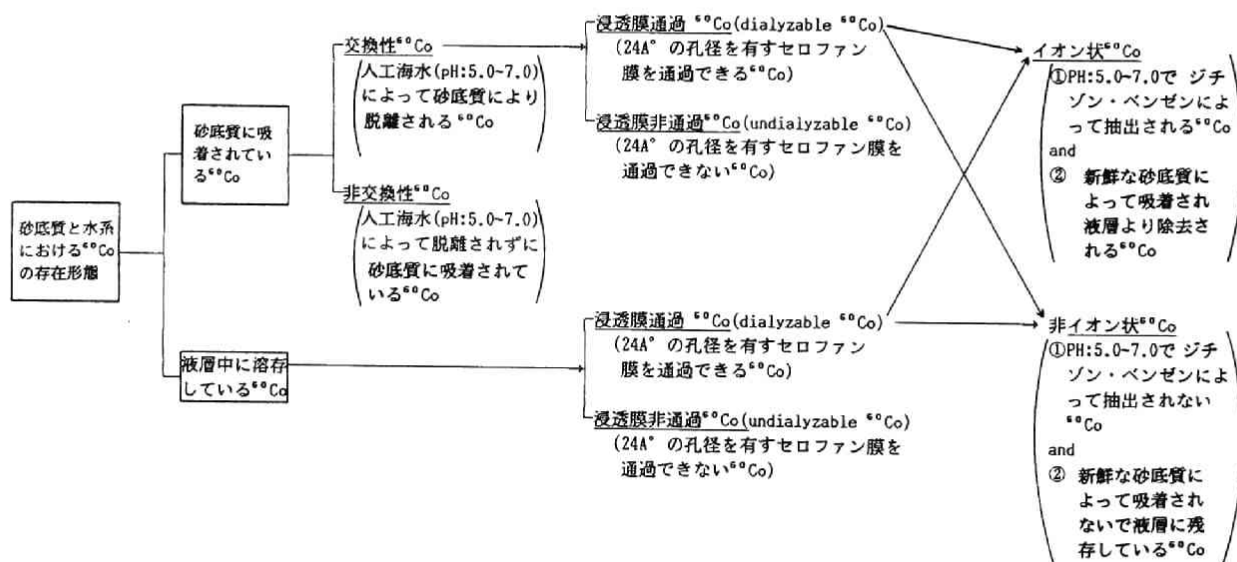


図3-1 砂底質と水系における ^{60}Co の存在形態分離フローと非・交換性 ^{60}Co ，非・膜通過 ^{60}Co ，非・イオン ^{60}Co の関係

3.2.3 結果と考察

(1) 種々の水圏環境条件内での ^{60}Co 移動能と吸着特性

水と底質の作る系の中で ^{60}Co を相互反応させた後、 ^{60}Co のもつ移動能*の大きさは底質を取り巻く環境因子によって大きく変化する場合と変化しない場合とがあり、それらについて以下に論じる。それらの因子としては、水の好気および嫌気条件、pH値、水と底質の種類の違い、さらに ^{60}Co の水-底質系内の相互反応の程度と、反応時間の長さ等が考えられる。砂底質と淡水、海水系内での ^{60}Co の移動能の大きさは、系の養生条件によって異なる。海水系嫌気条件下では ^{60}Co の移動能は非常に大きくなり、最小の移動能を有する淡水系の好気条件での ^{60}Co の移動能に比べて250倍以上大きくなった(図3-2参照)。このように溶液のイオン強度、pHと酸化・還元条件は、 ^{60}Co の底質

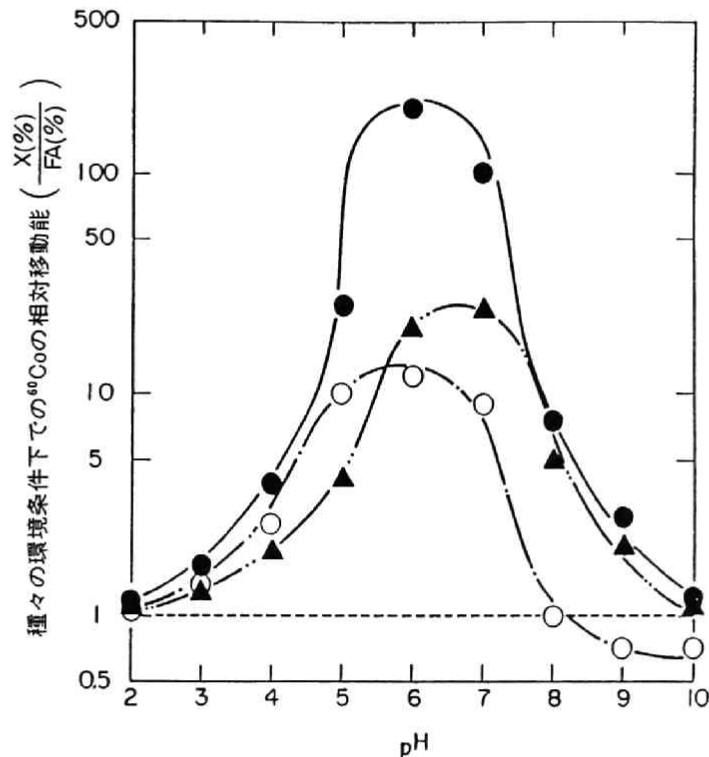


図3-2 種々の環境における ^{60}Co の移動能の大きさ

(X = ● ; 海水環境嫌気条件下での ^{60}Co の移動能,

▲ ; 淡水環境嫌気条件下での ^{60}Co の移動能,

○ ; 海水環境好気条件下での ^{60}Co の移動能,

FA = --- ; 淡水環境好気条件下での ^{60}Co の移動能)

* 底質-水の系に加えた全 ^{60}Co の中で底質に吸着されず液相に残存している ^{60}Co の全 ^{60}Co に対する割合(%)をここでは移動能(mobility)と定義する。

への吸着性能に大きく影響を与える。なかでも、 ^{60}Co を取り巻く周辺環境の酸化還元条件は、 ^{60}Co の底質への吸着に著しく大きく影響を与える因子の1つである（図3-3参照）。

^{60}Co の移動能の大きさは、水-底質系内での ^{60}Co の相互反応時間の長さによっても変化する。好気条件下、有機底質系では、 ^{60}Co 移動能の大きさは、相互反応時間の増加につれて減少した（これは、多分底質中に含まれる有機物のためであろう）（図3-4参照）。逆に嫌気条件下では、海水を含む系でしかも相互反応時間が30日を経たものでは、経過時間が2週間のものに比較すると顕著な ^{60}Co 移動能の増加がみられた（図3-5参照）。この増加は海水中での化学変化が原因であろう（特に酸化還元電位の変化）。しかも、これらの現象は全て底質を取巻く水のpHによって影響される。嫌気条件下海水

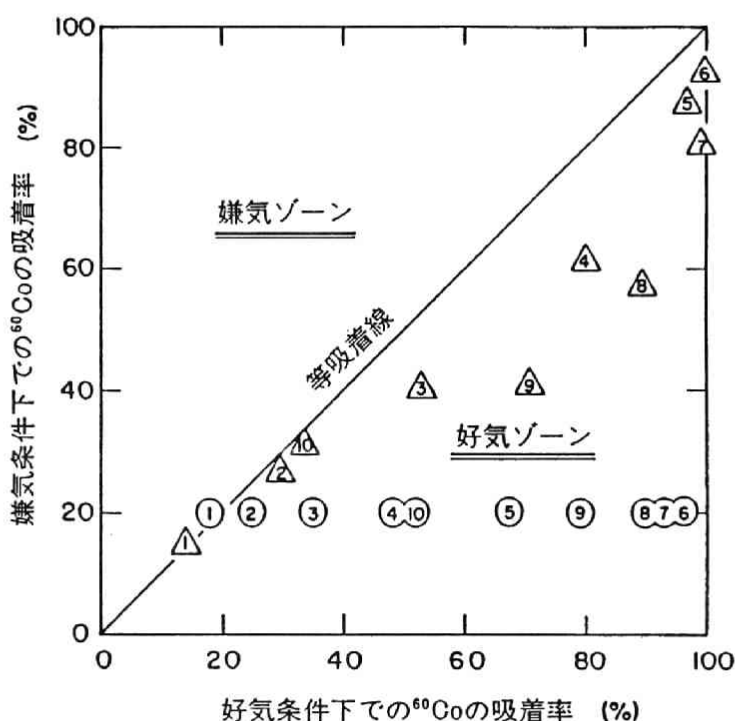


図3-3 好気および嫌気条件下で、 ^{60}Co -砂底質-水(淡水および海水)系における溶液pHの変化と ^{60}Co -砂底質上への吸着割合の分布

(例えば、⑤、pH=5.0における海水中での ^{60}Co の砂底質への吸着割合(%),
 △ pH=5.0における淡水中での ^{60}Co の砂底質への吸着割合(%), 好気ゾーン;
 好気条件下で測定された ^{60}Co の砂底質への吸着割合が嫌気条件下で測定された
 ^{60}Co の砂底質への吸着割合を上回る領域、嫌気ゾーン; 嫌気条件下で測定された
 ^{60}Co の砂底質への吸着割合が、好気条件下で測定された砂底質への吸着割合を上回
 る領域、等吸着線; 同一pHで ^{60}Co の砂底質への吸着割合が、好気条件下と嫌気条件
 下で等しくなる点をむすんだ直線)

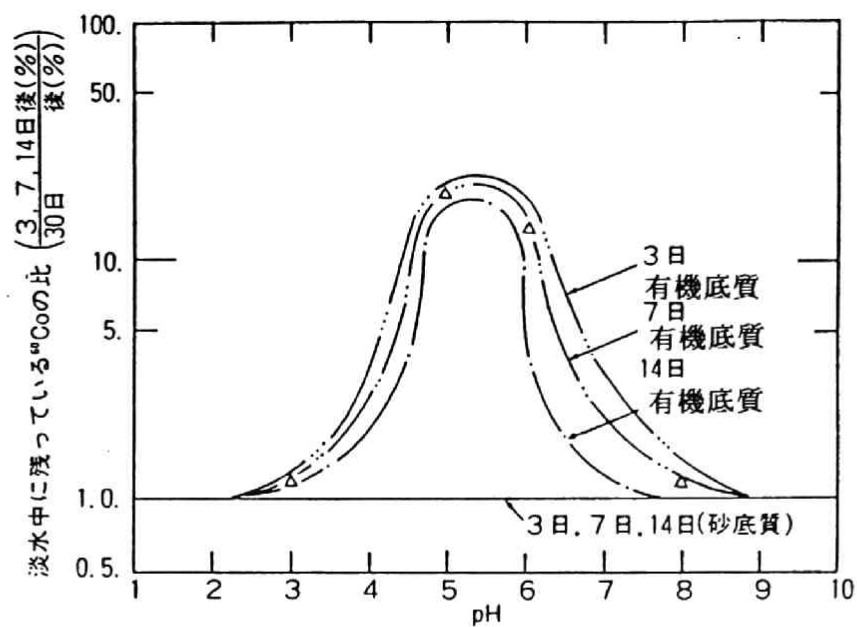


図3-4 淡水と有機底質を含む系内での pH の変化に伴う ^{60}Co の移動能の変化

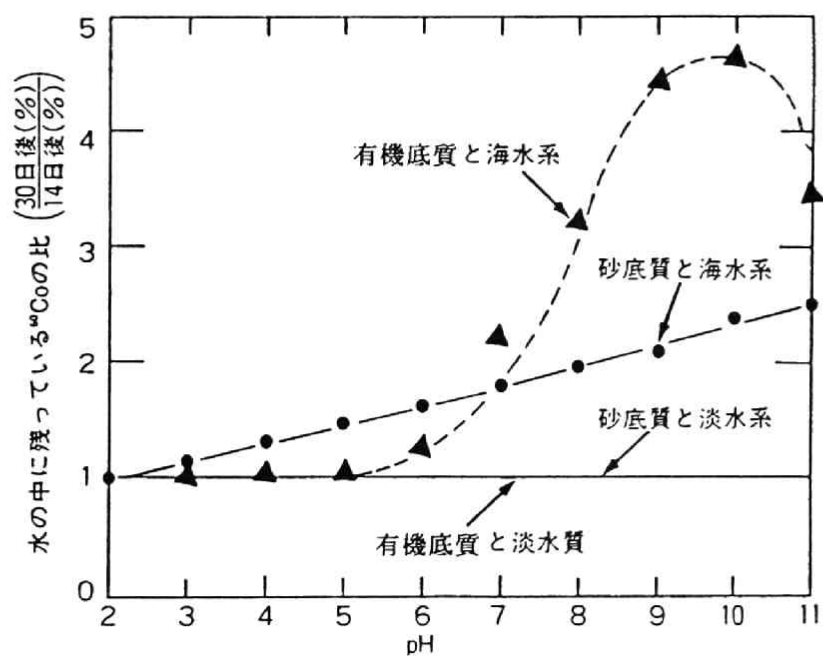


図3-5 嫌気条件下で、海水と底質系でpHの関数としての ^{60}Co 移動能

中での ^{60}Co の移動能は図3-6に示すように、砂底質と有機底質のいずれの系に対しても、 $\text{pH}=4.0\sim\text{pH}=9.0$ のほぼ中性域を含む、自然界で一般に出会う pH 領域では好気条件下でのそれよりも大きい。例えば有機底質系の嫌気条件下での移動能は、 $\text{pH}=5$ で好気条件下のそれと比較すると20倍大きくなっている。この現象は、長期にわたる ^{60}Co の地中での移動能が問題にされる場合には特に重要となる。なぜならば、有機底質のように沢山の有機物を含んでいる系は、ほとんど嫌気状態にあり、本研究の実験結果を基に考査するかぎりではそのような環境では、 ^{60}Co の移動能は著しく高くなるからである。図3-7では淡水系と海水系の嫌気条件下での ^{60}Co の移動能を比較した。砂底質系での移動能は、 $\text{pH}=7$ で比較すると海水中の方が淡水中よりも12倍大きかった。また、海水と淡水中での ^{60}Co のもつ移動能の大きさの比は、水の pH 値によって大きく左右されることが分った。しかしながら、海水中での相対的な移動能の大きさは、 $\text{pH}=7.0$ までは徐々に増加し、それ以降は pH の増加と共に減少した。

水圏環境内での ^{60}Co の移動能は pH 、溶存塩、酸化還元状態、底質の種類、と相互反応時間の長さによって強く影響を受けることが明らかとなった。ここでの一連の実験からは特に、嫌気条件の程度（即ち、酸化還元状態の程度）が ^{60}Co の移動能の大きさを決定するのにきわめて重要な働きを演じていることが分かった。酸化還元状態と ^{60}Co の底質－水系内での移動性および吸着性については次項において、さらに検討を加える。

(2) 酸化還元条件の ^{60}Co の底質への吸着特性に与える影響

環境の酸化還元状態を急激に変化させることによって ^{60}Co の移動能の変化を調べた結果、 ^{60}Co の移動能に対する不可逆性が観察された。このことは、換言すると、 ^{60}Co が最初に放出された底質と水が作る系で好気あるいは嫌気状態のような初期の酸化還元条件が、その後の ^{60}Co の移動能の大きさを決定する一つの大きな因子であることを示唆している。図3-8に、（初期の養生条件としての嫌気状態を急激に好気状態に変えた場合と、それとは全く逆に好気状態から嫌気状態に急激に変化させた場合に） ^{60}Co 移動能の変化の特徴を示す。これら一連の実績によれば、（i）仮に、 ^{60}Co が初めに嫌気条件下で高い移動能を持っている場合には、酸化還元条件が突然変化しても、初期に有していた高い移動能は失われない。また、逆に（ii）仮に ^{60}Co が、初めに好気条件下で低い移動能を持っている場合には酸化還元条件が変化したとしても、初めにもっていた低い移動能のままで移動能の増加は認められないことを示唆している。さらに、

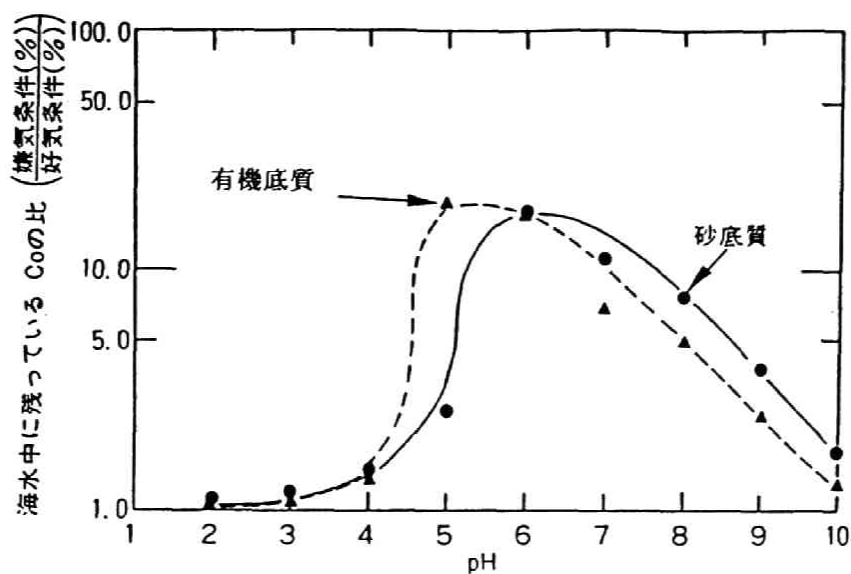


図3-6 種々のpHに対する、嫌気条件下、好気条件下での海水と底質の造る系内での ^{60}Co の相対的な移動能

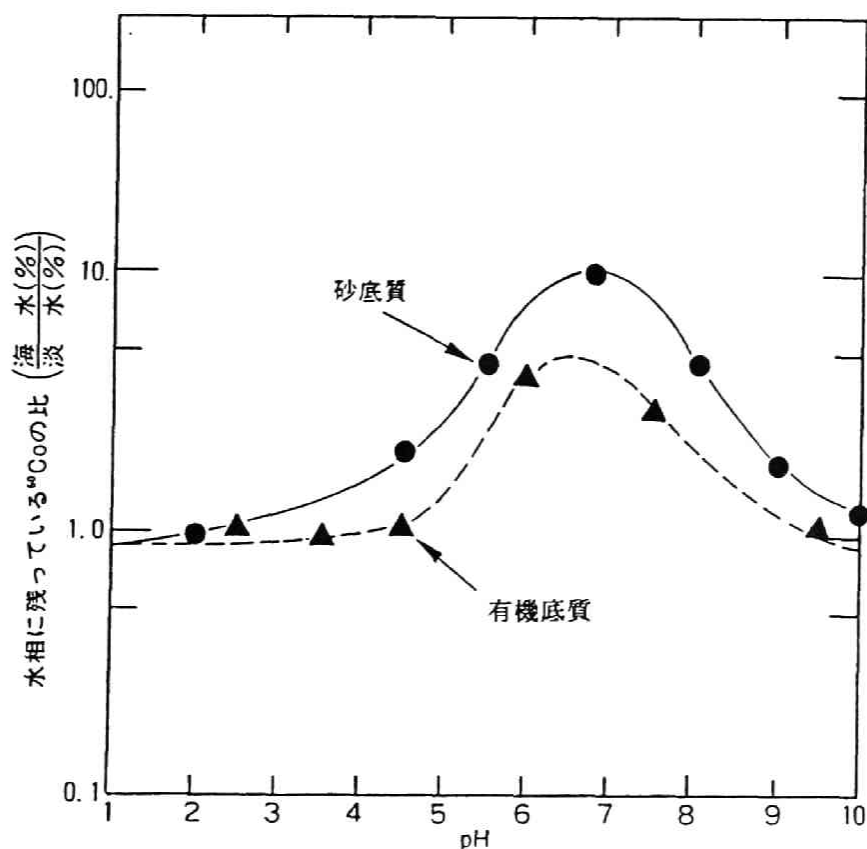


図3-7 種々のpHに対し嫌気条件下の淡水と底質の造る系内で ^{60}Co が持つ移動能と比較された嫌気条件下の海水と底質の造る系内で ^{60}Co が持つ移動能

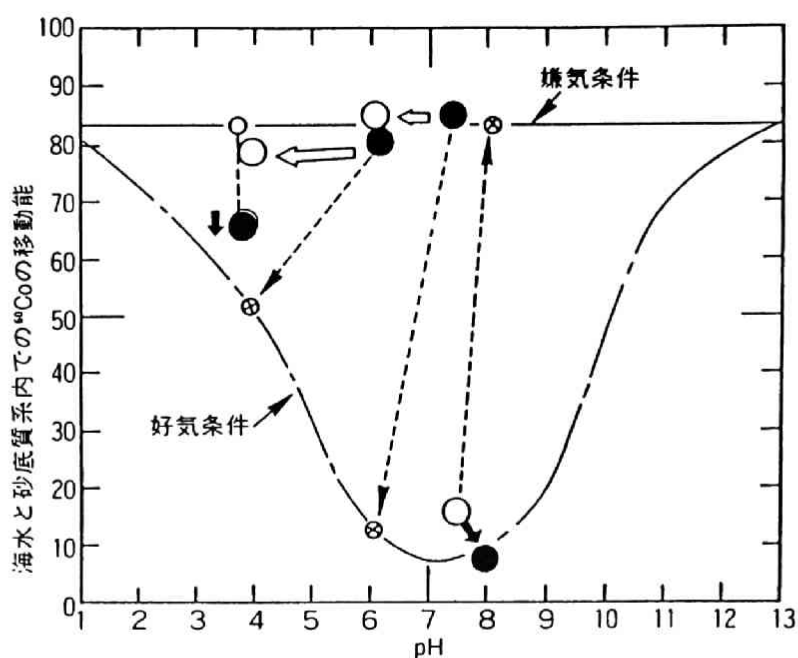


図3-8

^{60}Co -海水-砂底質系の養生条件を、好気→嫌気状態に、また嫌気→好気状態に急激に変化させた場合の pH 変動と ^{60}Co 移動能の大きさの変化 (○; 好気条件下での ^{60}Co 移動能の大きさ, ●; 嫌気条件下での ^{60}Co 移動能の大きさ, $-\rightarrow$ ○; 養生条件を急激に変化させた場合に、養生条件変化後の 好気あるいは 嫌気条件下で ^{60}Co の移動能の大きさに可逆性がある場合に期待される移動能の大きさの位置、 \Rightarrow ; 養生条件を嫌気→好気状態に変化させた時に実際測定された ^{60}Co の移動能の大きさの変化の方向, \rightarrow ; 養生条件を好気→嫌気状態に変化させた時に実際に測定された ^{60}Co の移動能の大きさの変化の方向)

^{60}Co と砂底質の吸着力に及ぼす酸化還元条件の違いについて調べる目的で、 ^{60}Co を淡水系内で好気条件および嫌気条件下で各々別々に30日間吸着させた砂底質を海水に曝露させ ^{60}Co の溶出の時間変化を見た。

図 3-9に淡水系内で ^{60}Co と30日間相互反応をさせた砂底質から人工海水中への ^{60}Co の溶出と曝露時間および曝露時の酸化還元状態の関係を示す。この ^{60}Co 溶出実験は、すべて ^{60}Co の底質上へ吸着が容易に生じる pH 領域 $5.5 \leq \text{pH} \leq 7.8$ で行った。

この実験を通じ、最初に ^{60}Co と砂底質を淡水中で好気条件の下で相互反応させた砂底質からは、ほとんど ^{60}Co の海水中への溶出は生じなかった (総吸着 ^{60}Co の1.5%が18日間で溶出した)。一方、最初に ^{60}Co と嫌気条件下で相互反応させた砂底質からは、

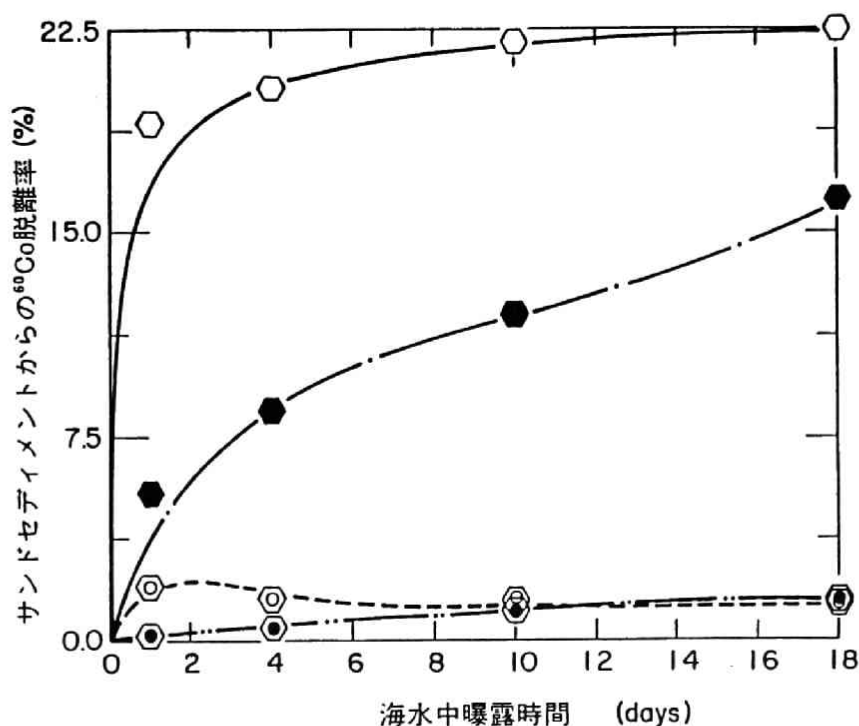


図3-9 ^{60}Co -砂底質-淡水系で ^{60}Co を30日間吸着させた砂底質を海水に暴露した場合の、初期養生条件（好気、嫌気）の違いと 暴露時間の経過に伴う ^{60}Co 脱離率の変化

- (○●; 好気条件下で ^{60}Co を砂底質と吸着させた後、好気条件下での人工海水による ^{60}Co 脱離率,
- ; 好気条件下で ^{60}Co を砂底質と吸着させた後、嫌気条件下での人工海水による ^{60}Co 脱離率,
- ; 嫌気条件下で ^{60}Co を砂底質と吸着させた後、好気条件下での人工海水による ^{60}Co 脱離率,
- ; 嫌気条件下で ^{60}Co を砂底質と吸着させた後、嫌気条件下での人工海水による ^{60}Co 脱離率)

総吸着 ^{60}Co の22.5%程度が海水中に溶出した。すなわち、 ^{60}Co と底質の吸着結合力は、 ^{60}Co と底質の吸着が生じる初期の環境の持つ酸化還元状態（つまり好気条件か、あるいは嫌気条件か）によって支配されるものと思われる。

一般に ^{60}Co やアクチニウム核種は、土壌表面をコーティングしている特にマンガン酸化物上にイオン交換反応によって強く吸着されることが Jenne⁽²⁴⁾、Means⁽²⁵⁾によって確認されている。マンガン(IV)酸化物のイオン交換容量はきわめて大きく、 $\text{pH}=8.3$ 海水中でもモンモリロナイトの15倍と言われている⁽³⁶⁾。しかしながら、還元条件下では $\text{Mn(IV)} \rightarrow \text{Mn(II)}$ へ還元反応が進行しマンガン酸化物は、可溶性マンガン Mn^{2+} と変化し、Stumm and Morgan⁽³⁷⁾によれば、 Mn(II) の溶出により それまでマンガン酸

化物上に強く吸着されていた放射性核種は、瞬時に液相中に放出されると報告されている。これらの知見を基に本結果を検討すると、好気条件下では ^{60}Co は底質の表面(表面を覆うマンガン酸化物層)だけでなく底質の組織そのものとも相互作用し、不可逆吸着である鉱物化等の続性作用(Diagenesis)が進行しているものと解釈できる。 ^{60}Co と淡水および海洋性の底質との吸着においては、Murray⁽³⁶⁾、中村と長屋⁽³⁹⁾、福井⁽⁴⁰⁾らの実験によってもかなりの部分の ^{60}Co が不可逆吸着を起こしていることがすでに確認されている。しかしながら、これらの研究においては、 ^{60}Co を含む周辺の酸化還元状態については、十分な配慮が払われていない。本研究における上記試験の結果は、嫌気条件下では、 ^{60}Co は好気条件下のそれよりも一般に弱く底質と結合されていることを示している。特に、約20%程度の ^{60}Co は弱く結合されており、海水の様にイオン強度の高い溶液中でそれら ^{60}Co が溶出されたものと予想される。以上の結果をまとめて整理すると図3-10(a)~3-10(b)となる。つまり ^{60}Co -底質水系の中では、全 ^{60}Co の内底質に吸着されずに水相に残る移動性の高い(mobile) ^{60}Co 成分と一度は固相へ吸着されるが、淡水系→海水系のように液相の塩分濃度変化に伴って容易に脱離される交換性(exchangeable) ^{60}Co 成分と液相の塩分濃度変動しても固相に吸着されている非交換性(irreversible) ^{60}Co 成分とに分けることが可能である。それら3つの ^{60}Co 成分が ^{60}Co -底質-水系内で占る割合は、環境条件(中でも特に酸化還元条件)によって強く支配される(図3-11(a), 3-11(b)参照)。これら移動性の高い ^{60}Co 、交換性 ^{60}Co の化学形態については、次項においてさらに検討を加える。

(3) 砂底質-水系内の ^{60}Co の化学形態

^{60}Co -砂底質-水系の中で得られた底質へ吸着されずに液相に残っている移動性の高い ^{60}Co と一度は底質上へ吸着されるが、液相の塩分濃度の増加によって底質より脱離した交換性の ^{60}Co (図3-9参照)を用いて行ったセロハン膜による透析実験において、セロハン透析膜を通過することのできる移動性の高い ^{60}Co および交換性 ^{60}Co に対し、ジチゾン・ベンゼン抽出法によって抽出を行った。その結果を表3-2に示すように、移動性の高い ^{60}Co は、0.24-1.5%がジチゾン・ベンゼンによって抽出されたにすぎず、残りの大部分は液相に残ったままであった。一方、交換性 ^{60}Co は78-98%がジチゾン・ベンゼンによって抽出された。比較のために行った $^{60}\text{CoCl}_2$ ストック溶液より新た

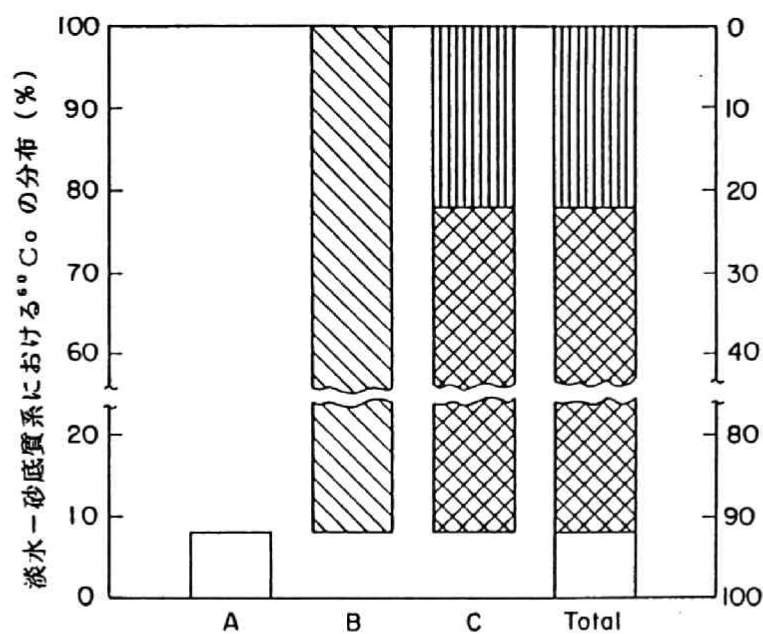


図3-10(a) 嫌気条件下砂底質淡水系での種々の移動能を持つ ^{60}Co の分布
(A ; □, 液層に残る移動性の高い ^{60}Co , B ; 砂底質相に残っている ^{60}Co , C ; ▨, ▩, Bの中で交換性の ^{60}Co と不可逆吸着 ^{60}Co , Total, A + C)

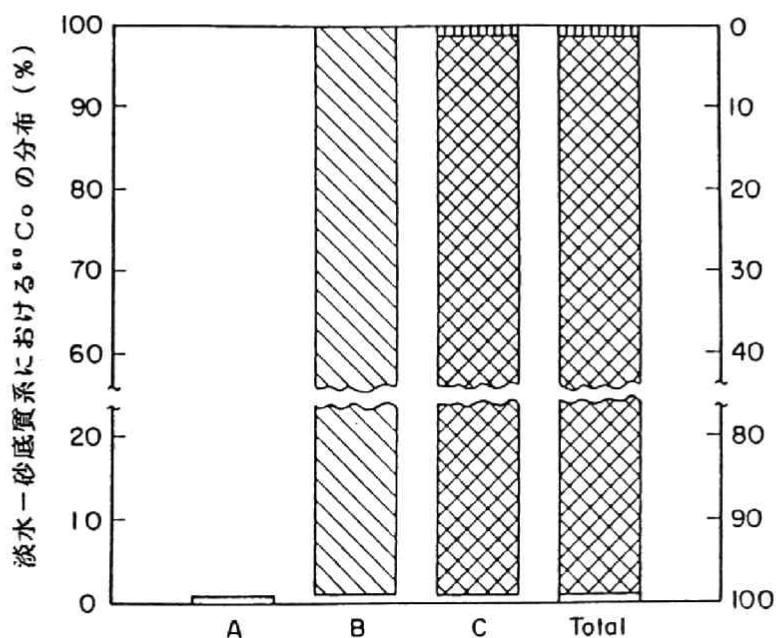


図3-10(b) 好気条件下砂底質淡水系での種々の移動能を持つ ^{60}Co の分布
(A ; □, 液層に残る移動性の高い ^{60}Co , B ; 砂底質相に残っている ^{60}Co , C ; ▨, ▩, Bの中で交換性の ^{60}Co と不可逆吸着 ^{60}Co , Total, A + C)

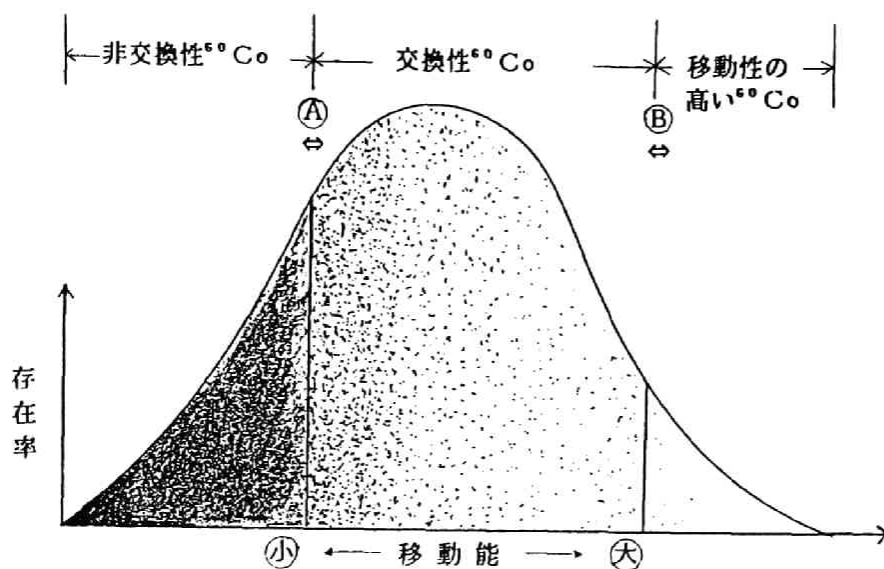
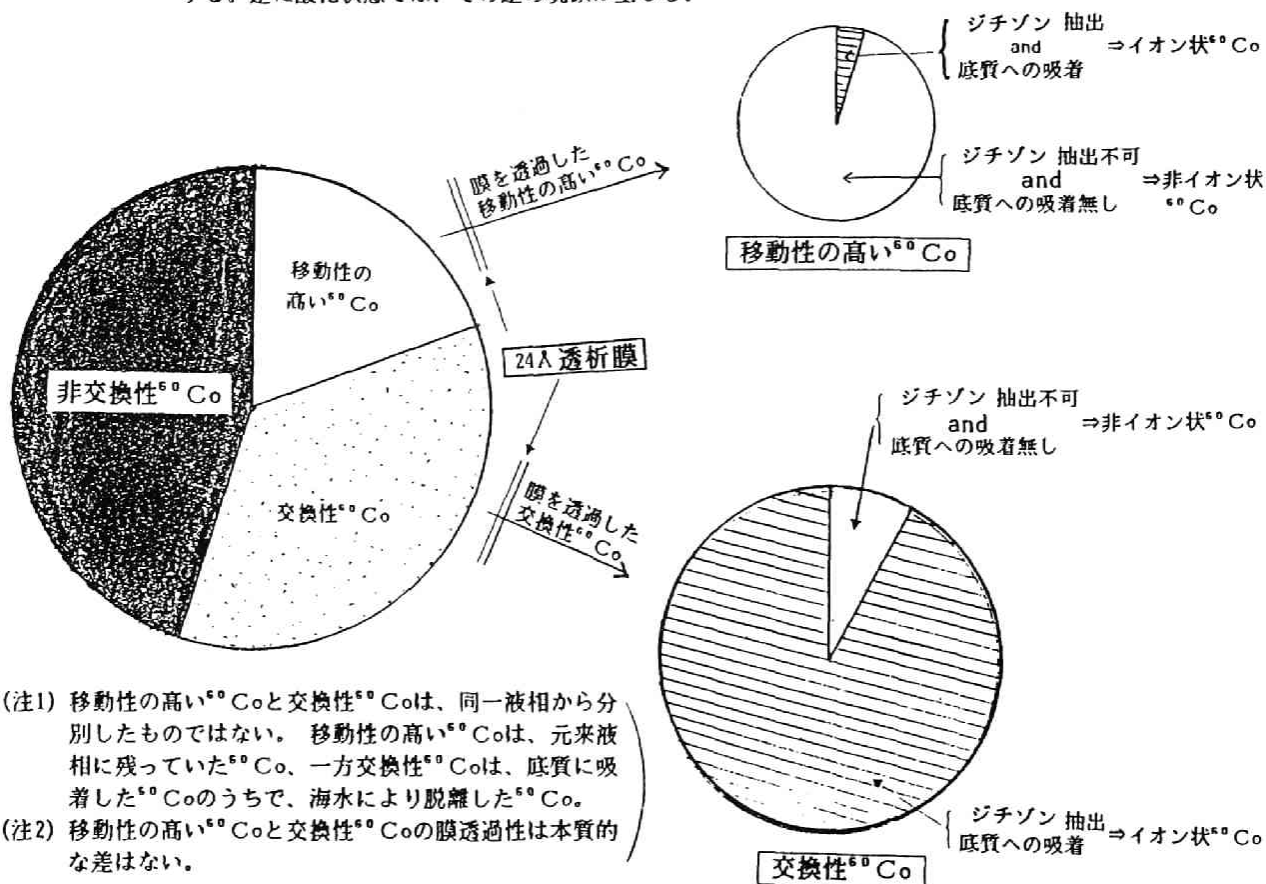


図3-11(a) ^{60}Co -底質-水系内での ^{60}Co の移動能の大きさと存在率の関係

非交換性 ^{60}Co と交換性 ^{60}Co の境界 (A) と、交換性 ^{60}Co と移動性の高い ^{60}Co の境界 (B) の位置は、底質の種類、水質、酸化還元状態、反応時間等によって変動する。例えば底質と ^{60}Co の吸着反応が最初に還元状態で進行すれば、境界 (A)、(B) は左へ移動し、移動性の高い ^{60}Co 領域が増え、非交換性 ^{60}Co の領域が減少する。逆に酸化状態では、その逆の現象が生じる。



- (注1) 移動性の高い ^{60}Co と交換性 ^{60}Co は、同一液相から分別したものではない。移動性の高い ^{60}Co は、元来液相に残っていた ^{60}Co 、一方交換性 ^{60}Co は、底質に吸着した ^{60}Co のうちで、海水により脱離した ^{60}Co 。
- (注2) 移動性の高い ^{60}Co と交換性 ^{60}Co の膜透過性は本質的な差はない。

図3-11(b) ^{60}Co -底質-水系における移動性の高い ^{60}Co と交換性 ^{60}Co の透析膜通過性と、膜を通過した各 ^{60}Co の化学形態

表 3-2 透析膜（孔径24Å）を通過した ^{60}Co の割合と、透析膜を通過できる ^{60}Co の中で ジチゾン・ベンゼンによる抽出率と新鮮な砂底質上への吸着率

^{60}Co のタイプ	移動性の高い ^{60}Co *					交換性 ^{60}Co **			
pH	1.35	3.51	5.90	7.15	9.60	5.20	5.45	6.00	6.37
浸透膜を通過できる ^{60}Co の割合 (%)	100	100	100	99.4	99.1	100	100	100	100
ジチゾン・ベンゼンによる抽出率 (%)	0.47	1.54	1.50	1.31	0.24	77.9	79.1	98.2	97.9
砂底質上への吸着率 (%)	3.80	6.70	5.75	5.80	5.00	83.5	85.2	86.6	82.2

(注) : * 嫌気性条件下海水環境で養生された ^{60}Co
 ** 海水曝露によって砂底質より脱離した ^{60}Co

に造った ^{60}Co 人工海水溶液からのイオン状 ^{60}Co のジチゾン・ベンゼン抽出結果（図 3-12参照）を基に上記結果を眺めると、移動性の高いコバルトはイオン状 ^{60}Co ではない。逆に交換性 ^{60}Co の大部分はイオン状であると推定される。

セロハン透析膜を通過することのできる移動性の高い ^{60}Co と交換性 ^{60}Co を含む溶液に新鮮な砂底質を加え、再度吸着実験を行い吸着特性を調べた。この実験の意味は、移動性の高い ^{60}Co あるいは交換性 ^{60}Co が砂底質に吸着されるならば、人体への危険は少ないが、仮に吸着されないのならば、高い移動性能を持つことになり、人体への影響を考慮しなければならないことになる。結果は図 3-12に示すように移動性の高い ^{60}Co は僅かに 3.8-6.7%が底質上に吸着されたが、残りの大部分は、溶液のpHとはほとんど関係なく液中に存在していた。

一方、交換性の ^{60}Co はその大部分が（82.2-86.6%）、溶液pHが 5-7の範囲で砂底質上に吸着された。この結果からも 移動性の高い ^{60}Co がイオン状 ^{60}Co ではなく、低分子量のきわめて安定な物質と強く結合していることが推測される（図3-13 参照）。残念ながら今回の一連の実験の中では、その化学種を同定するまでには至らなかった。

3.2.4 結論

一連の室内実験を通じて、以下の結論を得た。

- (1) 水と底質からなる系で相互反応させた ^{60}Co の移動能の大きさは（pH、溶存酸素

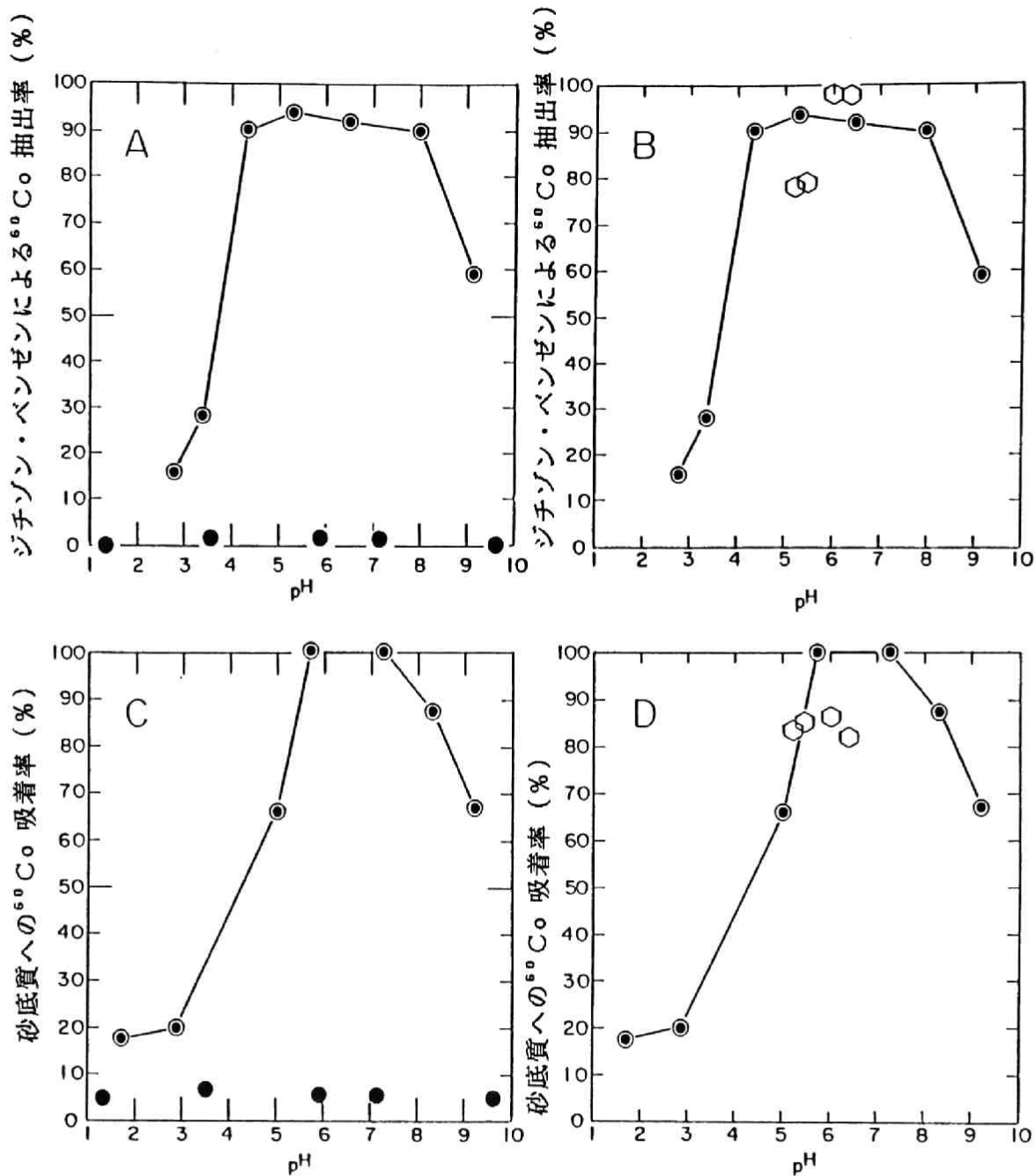


図 3-12 pH変化と種々のタイプの ^{60}Co のジチゾン・ベンゼン抽出率と砂底質への吸着率

(A ; 移動性の高い ^{60}Co とイオン状 ^{60}Co のジチゾン・ベンゼンによる抽出,

B ; 交換性 ^{60}Co とイオン状 ^{60}Co のジチゾン・ベンゼンによる抽出,

C ; 移動性の高い ^{60}Co とイオン状 ^{60}Co の砂底質への吸着,

D ; 交換性 ^{60}Co とイオン状 ^{60}Co とイオン状 ^{60}Co の砂底質への吸着,

● ; 移動性の高い ^{60}Co , ◎ ; イオン状 ^{60}Co , ○ ; 交換性 ^{60}Co)

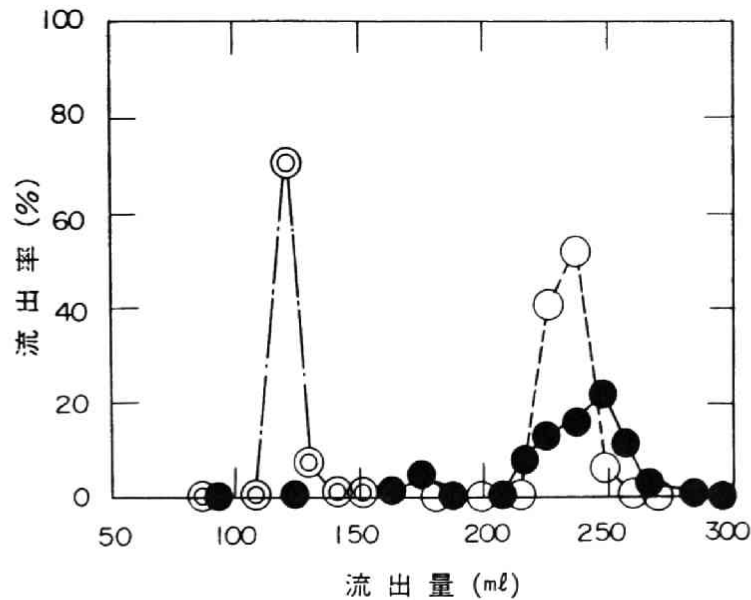


図 3-13 海水中での種々の化学形態を有す ^{60}Co のゲル浸透クロマトグラフによる
溶出曲線

○；イオン状 ^{60}Co ， ◎；EDTA- ^{60}Co 錯体，
●；海水中嫌気条件下で生成された移動性の高い ^{60}Co

と塩の溶存量、底質の種類と相互反応時間等）系の環境因子によって大きく（250倍以上にも）影響を受けた。

- (2) 海水環境中の ^{60}Co は淡水環境中よりも移動能が高い。特に、海水中の ^{60}Co の移動能の大きさは、嫌気条件下の方が好気実験下よりも20倍大きかった。また、それは溶液のpH変動によって影響をうけなかった。
- (3) 水と底質が作る系の中で ^{60}Co の相互反応は不可逆的であった。例えば、系①の中で30日間相互反応させた後に別な系②に入れた ^{60}Co の移動能の大きさは、初めから ^{60}Co を系②へ入れて得られる移動能の大きさとは同じではなかった。したがって、初期の環境条件は環境へ放出された ^{60}Co のその後の移動特性を決定する上で非常に大きな役割を演じている。
- (4) ^{60}Co -底質-水が造る系の中で、 ^{60}Co の各相に存在する割合を考えた場合には、底質に吸着されずに液相に残存する ^{60}Co 成分と、底質に吸着されてはいるが、液相の塩分濃度等が変動すると液相に脱離してくる ^{60}Co 成分と、液相の塩分濃度の変動くらいでは、容易に脱離しない ^{60}Co 成分とに区分できる。それらを、本論文の中では、各々移動性の高い ^{60}Co 成分、交換性 ^{60}Co 成分と非交換性

^{60}Co 成分と呼ぶ。各成分への配分割合は、底質と ^{60}Co の相互反応初期の環境の(酸化還元)条件によって強く影響をうける。移動性の高い ^{60}Co 成分の大部分は、低分子量の非イオン状(例えば、低分子化合物あるいは、極微細粒子に取り込まれたもの)であり、きわめて化学的に安定している。交換性の ^{60}Co 成分は、イオン状の ^{60}Co である。非交換性 ^{60}Co 成分については、本研究の中では、その化学形態の確認はできなかった。

- (5) 以上の実験結果をもとに考察すると、 ^{60}Co で汚染された発電所廃棄物は、 ^{60}Co の移動性を考えると嫌気条件下では貯蔵や処分は行うべきではない。また、海水中で ^{60}Co の移動性が高くなることを考えると、海岸周辺での処分も望ましくない。このように考えると、 ^{60}Co 汚染物は内陸部の通気層部に地中処分することが最も望ましいと考えられる。

3.3 ^{239}Pu の土壌への吸着性に関する実験的検討

3.3.1 研究の背景と目的

環境のプルトニウム汚染は、1945年に始まった。それらはAlamagordoでの核実験と長崎での原爆によるものである。Alamagordoの気候は非常に乾燥しており、逆に長崎は湿润で年降水量2000~2500mm/yrである。長崎では、プルトニウムは40年間に地表から30cm深度まで移動しているが大部分は地表のごく近傍に蓄積している。しかしながら、非常にわずかながらプルトニウムは地下水面まで地中を移動しており、一部は地下水中に流出している^(41, 42)。

初期の室内研究では、プルトニウムの分配係数がきわめて大きいことからプルトニウムは、きわめて地中を移動しにくい核種であると考えられていた^(43, 44)。これら研究では、ほとんどプルトニウムの化学形態(例えば、酸化状態、地下水中の溶存物質、天然あるいは人工のキレート剤、コロイドや微量懸濁物への吸着等)には注意が払われていなかった。しかしながら、プルトニウムの地中移行を考える場合、移動性の高いプルトニウム(mobile plutonium)は重要である。事実、米国の商業用陸地処分場からは、かなりのプルトニウムの漏洩が報告されている^(11, 19, 45, 46)。原位置でのプルトニウムの移行観察を基に、環境中でのプルトニウムの移動性について精力的に研究が進められている^(11, 45, 46, 47, 48, 49)。

本研究では、①模擬した地下水環境内でのプルトニウムの吸着挙動をバッチ法およびカラム法にて調べ、②地中移行中に分離された移動性の高いプルトニウムの化学的特徴について検討した。

3.3.2 実験方法

プルトニウム (^{239}Pu (IV価)*) の分配係数と溶液 pH の関係をバッチ法によって測定した。pH の調整は、0.01N HCl と 0.01N NaOH を用いて行った。実験に用いた土壌は、砂質土 (原研東海研構内の 5m 深度より採取) とシルト質ローム (長崎市西山の深度 0 ~ 0.5m 深度より採取) であった。また実験に用いた原研地下水 (WT)、西山地下水 (WN) は、各々原研東海研の地表より 5m 深さの帯水層中の地下水および西山でのボーリング孔深度 2.5m の基盤岩上の湧出地下水である。実験に用いた土壌と地下水の特徴を表 3-3 に整理して示す。

バッチ法の手順は以下の通りである。100ml の遠沈管の中に風乾 0.5g の土壌と ^{239}Pu 溶液 50ml (100 ~ 1000 pCi/ml) を加え、pH 調整の後 24 時間ゆっくりと混合させた。混合物を 20 分間 2000rpm で遠心分離し浮遊懸濁物を沈降させた後 0.45 μm のメンブランフィルターで吸引濾過した。濾液 5ml を分取し低バックグラウンド 2 π ガスフローカウンターによって α 計測を行った。分配係数 (k_d) は、次式において求めた。

$$k_d = \frac{V_s}{W} \cdot \frac{C_0 - C}{C} \quad \dots\dots\dots (3-1)$$

ここに C_0 : 溶液中の ^{239}Pu 初期濃度 (pCi/ml)
 C : " ^{239}Pu 平衡 " (pCi/ml)
 V_s : 溶液の体積 (ml)
 W : 土壌の重量 (g)

^{239}Pu の動的移行試験を小カラムを用いて行った。カラム試験に用いた土壌および地下水は西山シルト・ロームと西山地下水 (WN) であった。カラムは 10 個のすり合せガラスセグメント ($\phi = 20\text{mm}$, $H = 10\text{mm}$) を連結し 溶液がすり合せ部より漏れないことを確認

* 8 mol 硝酸液中で保存した Pu 溶液 50ml を現場で採取した 10 ℓ 地下水に希釈した。

Pu(IV) の確認は、Pu(IV) を選択的に抽出する TTA キシレン抽出法により確認した。

表3-3 土 壌 の 物 理 化 学 的 特 徴 と 地 下 水 水 質

土 壌	試 料	土 壌 粒 度 分 布 %												
		粘土 <0.005 mm	シルト 0.005-0.074 mm	砂 >0.074 mm	真比重	陽イオン 交換容量 meq/0.1kg	粘 土 鉱 物 組 成 *							
							Hall	Mont	Chl	Pl	Qtz	Crist	Trid	Hem+Ilm
土 壌	砂 質 土	5	10	85	2.67	0.9	C	C	C	A	A	-	-	C
	シルト質 ローム	43	47	10	2.59	13.2	B	-	C	B	B	B	C	C
地 下 水	試 料	Cond (μ S/cm)	pH	DOC mg/ ℓ	Ca ²⁺ mg/ ℓ	Mg ²⁺ mg/ ℓ	Na ⁺ mg/ ℓ	K ⁺ mg/ ℓ	SO ₄ ²⁻ mg/ ℓ	HCO ₃ ⁻ mg/ ℓ	Cl ⁻ mg/ ℓ			
	東海地下水 (WT)	725	7.3	2.8	67.8	23.3	42.6	5.1	126.7	198.9	50.4			
	西山地下水 (WN)	125	7.7	2.7	6.8	3.9	8.6	1.5	12.0	38.0	9.0			

* 粘土鉱物組成は、X線解析によって決定した。

A: 大量存在

B: 中量存在

C: 少量存在

-: 存在せず

Hall ; halloysite (ハロイサイト)

Mont ; montmorillonite (モンモリロナイト, 粘土鉱物)

Chl ; chlorite (緑泥石)

Pl ; plagioclase (斜長石)

Qtz ; quartz (石英)

Crist ; cristobalite (クリストバル石, 珪酸鉱物の一種)

Trid ; tridymite (鱗珪石)

Hem+Ilm: hematite+ilmenite (赤鉄鉱+チタン鉄鉱)

後、このガラスカラム内にシルト質ローム（33.2g）を空隙率0.53で一様に充填した。作成した充填土壌カラムの土柱高さは86mmであった。この土壌カラムに、 ^{239}Pu 溶液（ $\text{pH}=7.85$ 、 100pCi/ml ）を 0.14ml/min （通水速度 0.084cm/min ）で総量流出量が 3000ml になるまで通水した。通水終了後、土壌カラムは、10個のセグメントに分割し各セグメント中の土壌に吸着された ^{239}Pu 濃度（ pCi/g ）を ^{239}Pu の放出する γ 線（ 129.3keV ）を低バックグラウンドGe γ 線波高分析器（ORTEC 社）を用いて測定した。

^{239}Pu の地中移行時に土壌中に含まれる微細粒子（ $<0.15\text{mm}$ ）と 地下水中の懸濁物質（ $<0.45\mu\text{m}$ ）のいずれが重要な働きをするか検討する目的で表 3-4に示す4種類のカラム（A、B、C、D）試験を行った。試験に用いた土壌は、原研東海で採取したオリジナル砂質土と、その砂質土より 0.15mm 以下の粒子をふるいによって分別しさらに蒸留水で十分に洗いシルトおよび粘土分を除去した調整砂である。また実験に用いた地下水は、原研東海研で採取した未調整地下水（WT）とその地下水を $0.45\mu\text{m}$ のメンブランフィルターで濾過し懸濁物質を除去した調整地下水である。土壌カラムは、各土壌を空隙率0.35となるように充填した。各カラムは ^{239}Pu 溶液を流す前に、調整地下水を48時間

表3-4 土 壌 プ ル ト ニ ウ ム の 地 中 移 動 実 験 条 件

カラム No	カラムに充填した土壌の種類	プルトニウム溶液 ^{*1}	カラム洗浄に用いた地下水	備 考
A	未 調 整 砂 質 土	未調整地下水にプルトニウムを加えて作成	調 整 地 下 水	——
B	調 整 砂 質 土 ^{*2}	未調整地下水にプルトニウムを加えて作成	調 整 地 下 水	——
C	未 調 整 砂 質 土	調整地下水にプルトニウムを加えて作成 ^{*3}	調 整 地 下 水	2次分配係数測定 ^{*4}
D	調 整 砂 質 土	調整地下水にプルトニウムを加えて作成 ^{*3}	調 整 地 下 水	2次分配係数測定

* 1 ; プルトニウム溶液は、 15°C $\text{pH}=7.85$ で50日間養生

* 2 ; 調整砂質土は、 0.15mm 以下の粒径分を除去して作成

* 3 ; 原研（東海研）構内の地下5mより採水した地下水をメンブランフィルター（孔径 $0.45\mu\text{m}$ ）で濾過して懸濁物質を除去して作成

* 4 ; カラムからのプルトニウム流出液を用いて新鮮な未調整砂質土を用いて2次分配係数を測定

通水しコンディショニングを行った。 ^{239}Pu 溶液 (^{239}Pu 添加後 $\text{pH}=7.85$ 、 15°C で50日間養生)を $0.14\text{ml}/\text{min}$ で総流出量が 1000ml となるまで通水後、 ^{239}Pu を含まない調整地下水 2000ml を $0.14\text{ml}/\text{min}$ で流しカラムを洗浄した。試験終了後、10個のガラスセグメントの土壌を低バックグラウンド $\text{Ge}\gamma$ 線波高分析器によって γ 線計測を行い土壌カラム内の ^{239}Pu の吸着濃度分布を決定した。

前述のカラム試験の際、カラムCおよびDからの流出液中にかなりの ^{239}Pu の存在が明らかとなったので、それら流出液(500ml)と砂質土 (5g)を用いてバッチ法によって2次分配係数* (Secondary Distribution Coefficients)を測定した。手順等は、前述の手法に従った。

^{239}Pu の溶液中(カラムC, Dへ通水したオリジナル ^{239}Pu 溶液、カラムCおよびDからの流出液、ならびに2次分配係数測定**後の平衡溶液)の化学形態(酸化状態等)を決定する目的で、Bondietti⁽⁵⁰⁾等が用いた手法(TTA-キシレン抽出、メチル・イソ・ブチル・ケトン抽出および $\text{Zr}(\text{IO}_3)_4$ 共沈)によって酸化(V+VI価)、還元(III+IV価)およびポリマー ^{239}Pu の分離を行った。分離操作の流れを図3-14に示す⁽⁴⁷⁾。同時に分離されるPuの酸化状態を図中に示す。

3.3.3 結果と考察

(1) Pu(IV)の分配係数と溶液 pH

砂質土とシルトロームに対するPu(IV)の分配係数(k_d)を $\text{pH}1.0\sim9.0$ の範囲でバッチ法によって測定した。 $\text{pH}>9.0$ では、 k_d の正確な測定は、コロイド物質の形成のために困難である。一般に、シルト質ローームに対するPu(IV)の分配係数は、砂質土に対するものよりも $\text{pH}1.0\sim9.0$ の範囲では1桁大きな値であった。

砂質土およびシルトロームに対する分配係数は、図3-15に示すように $\text{pH}>6.0$ では急激に増大し、いずれも 10^4 以上のおおきな値に達しており土壌に強く吸着される傾

* 2次分配係数：ここでは、カラムC, Dからの流出液を用いてバッチ法にて測定した分配係数を2次分配係数として定義し、以降2次分配係数と呼ぶことにする。

** 2次分配係数測定平衡溶液：ここでは、前述のバッチ法による2次分配係数測定後の吸着平衡上澄溶液をさす。

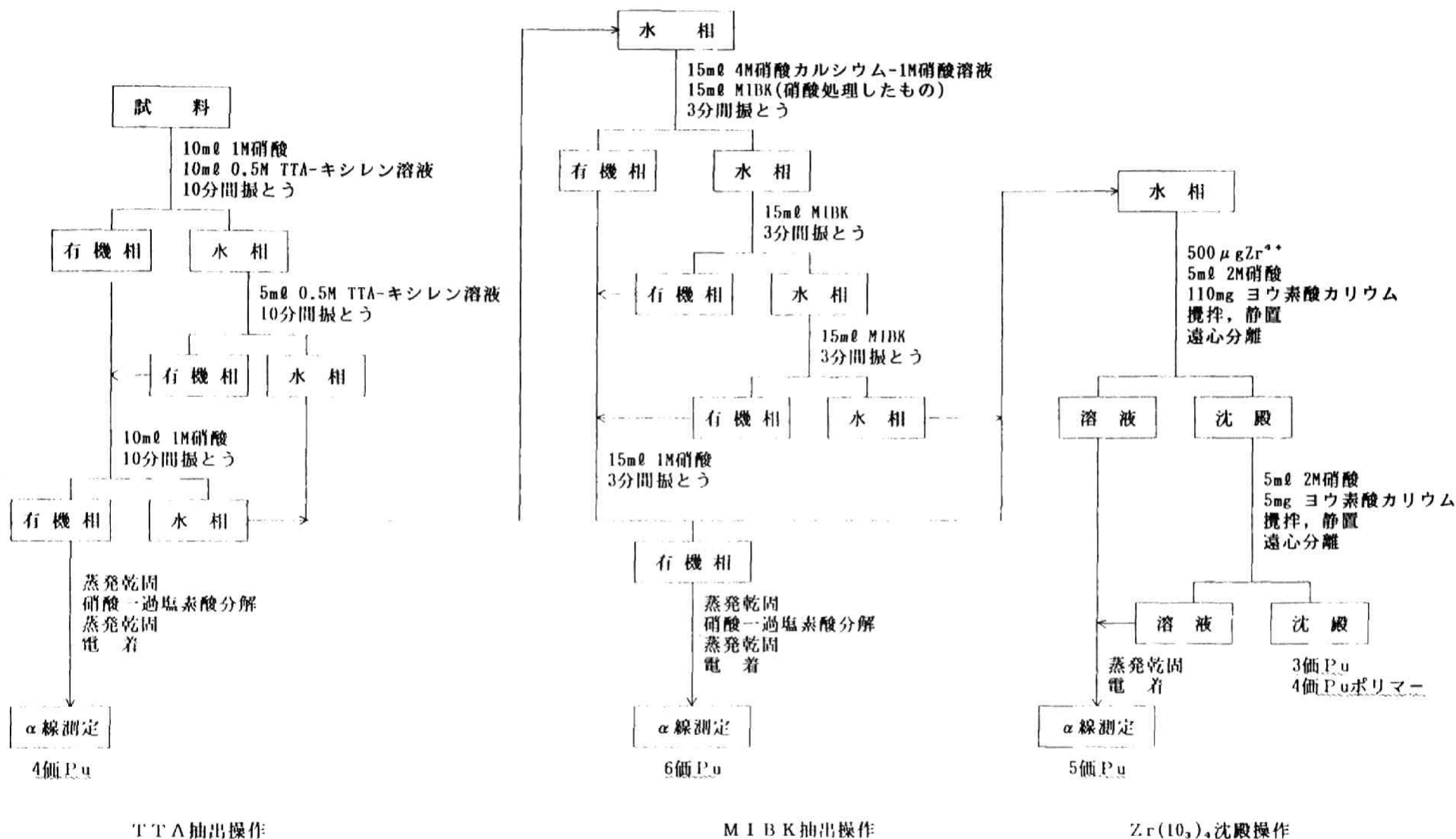


図 3-14 溶存Puの酸化状態別分離操作フローと分離されるPuの酸化状態

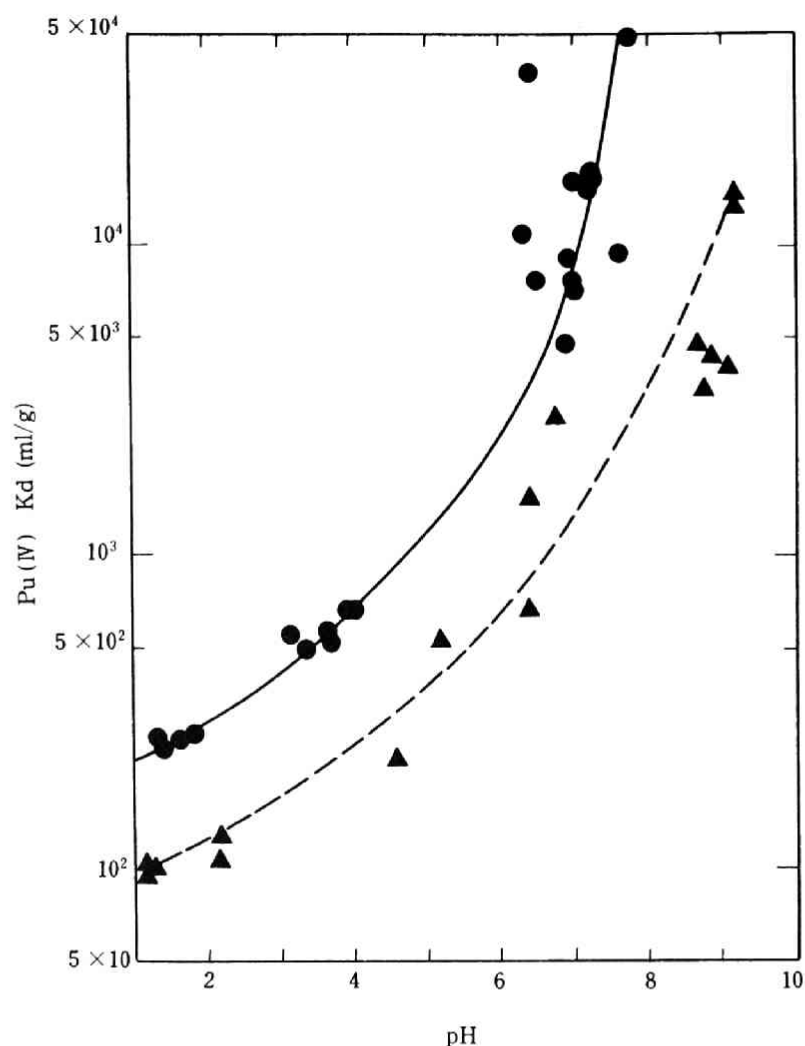


図 3-15 pHとプルトニウム (IV価) の分配係数の関係

(●; 西山シルト質ローム, ▲; 砂質土)

向が見られる。この傾向は、すでに多くの研究者^(43, 51)によって確認されてきたことである。この結果のみから判断すると、浅層地中に漏洩したプルトニウムは容易に土壌表面に吸着保持されることになり、プルトニウムは地中を移動しないと結論づけることが可能かもしれない。しかし一方では、プルトニウムの一部が地中を地下水と同じ速度で移動しているという事実も確認されている⁽⁴⁷⁾。したがって、このバッチ試験の結果だけではプルトニウムが浅層地中環境内で移動性の高いものか、移動性の低い (immobile) ものかという判断はつけられない。

(2) 地下水環境内での移動性の高いプルトニウムと移動性の低いプルトニウム

前述のように中性pH領域では、シルト・ロームに対するバッチ法で求めた分配係数は、きわめて大きなものとなった。シルト・ロームを使ったカラム法では、破過曲

線 (Break through curve)を得るまでには至らなかったため、カラム内のプルトニウムの吸着濃度分布を測定し、カラム上端 (Pu溶液流入端) の土壌と流入Pu溶液とは吸着平衡に達しているものと考え、上端土壌中のPu吸着濃度 q_{\max} をもって、各セグメント中のPu吸着濃度 q を規格化し 濃度 q/q_{\max} を縦軸にとり、横軸に深度をとりプロットした。得られたPu濃度吸着分布に2.3.3節で述べたのと同じ一次元移流拡散方程式を定濃度条件の下で解いて得られた解析解

$$\frac{C}{C_0} = \frac{1}{2} \left[\operatorname{erfc} \left(\frac{Z - VT}{\sqrt{4D^*t}} \right) + \exp \left(\frac{VZ}{D^*} \right) \operatorname{erfc} \left(\frac{Z + VT}{\sqrt{4D^*t}} \right) \right] \quad \dots\dots\dots (3-2)$$

ここに $D^* = D/R$ D は拡散係数
 $V = U/R$ U は地下水流速
 Z は土壌深度
 R は遅延係数

で予測した理論吸着分布曲線をフィッティングさせ最適な大きさの遅延係数 R を推定した (図 3-16 参照)。この推定によって得られた R を用いて次式

$$R = 1 + \frac{1-f}{f} \cdot \rho \cdot kd \quad \dots\dots\dots (3-3)$$

によって分配係数 kd を推定した。今の場合図 3-16より $R = 20000$ であるので実測した $f = 0.528$ $\rho = 2.59$ を式 (3-3) に代入すると $kd = 8600 (\text{ml/g})$ となる。この値は、パッチ法によって測定された値ともほぼ一致している。一方このシルト・ロームに対し、フォールアウトプルトニウムの移行分布よりフィールドで測定されたプルトニウムの分配係数は $860 (\text{ml/g})$ と 1 桁小さな値であり、これは Nelson⁽⁵²⁾ によって説明されているように、プルトニウムの酸化状態の違い等を含めた化学形態の違いによるものと解釈される。

カラム内でのプルトニウムの分布を見ると、高濃度領域がカラムの上層部に存在し、希薄濃度領域がカラムの終端にまで拡散している。またカラムに供給した全プルトニウムの内 0.1% は、土壌に吸着されることなく流出液中に流出している。一方、長崎のフォールアウトプルトニウムの場合にも、全降下プルトニウムの 97% は、地表より 0.3m の深さのシルト質ローム土中に保持されていたが、残りの 3% は希薄濃度で 2.25 ~ 6.5m の深度ににある基盤岩上まで浸透拡散しており、一部は周辺地下水中に 0.65 ±

0.013fCi/l 濃度で流出している。これらの室内実験およびフィールド調査の結果を合せて考えると、地中では移動性の高いプルトニウム (mobile plutonium) がわずかなではあるが生じる可能性があることを示唆している。

(3) プルトニウムの地中移行における土壌微細粒子と地下水中懸濁物の影響

^{239}Pu を含む地下水として未調整地下水、調整地下水および ^{239}Pu の吸着体として未調整砂質土、調整砂質土を表 3-4に示す実験条件で組合せ4種の ^{239}Pu 移行カラム試験を行った。各カラム内の ^{239}Pu の吸着分布を図3-17に示す。この実験結果によれば、カラムA, Bの流入端でPuは大きく吸着され、流出端に向かうにつれて、急激にPu吸着濃度は減少し、流出液中Pu濃度は小さい。一方、カラムC, Dでは、流入端でのPu吸着量は、A, Bに比べ半分以下で、流出端に向かって徐々に減少しているが、その流出端での吸着濃度は、A, Bとほぼ同程度で、カラムで吸着されなかったPuは流出液中に存在し、その濃度は、A, Bよりも2倍以上高い結果となっている。このPu吸着分布の違いを微細粒子の影響と、地下水中懸濁物の影響という観点

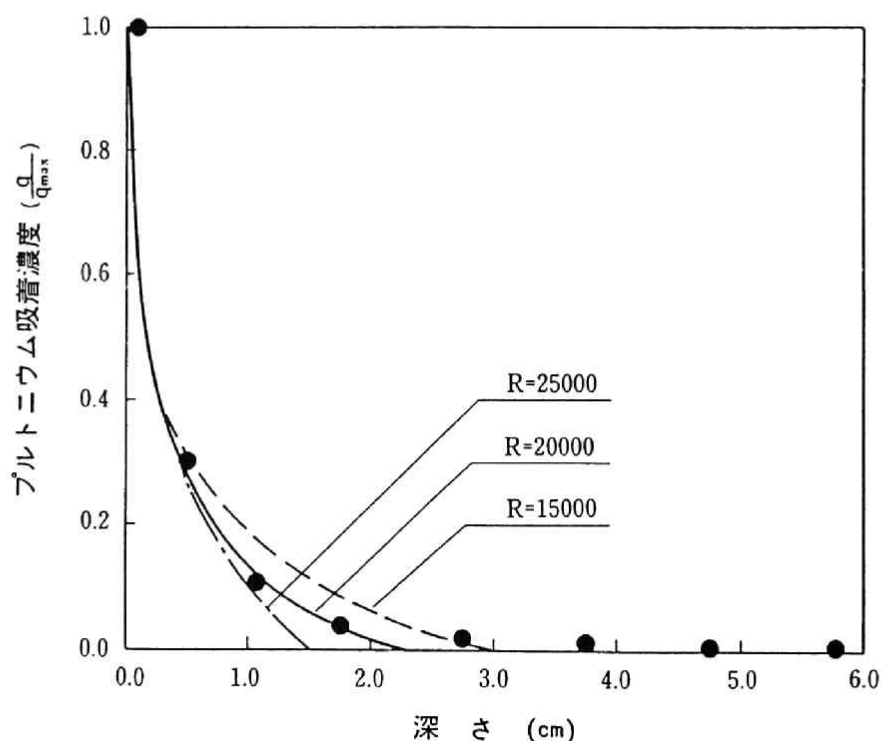


図 3-16 西山シルト質ロームカラム内のプルトニウムの吸着曲線

(●; 実測値, --- ; R=25000計算値, — ; R=20000計算値
; R=15000計算値)

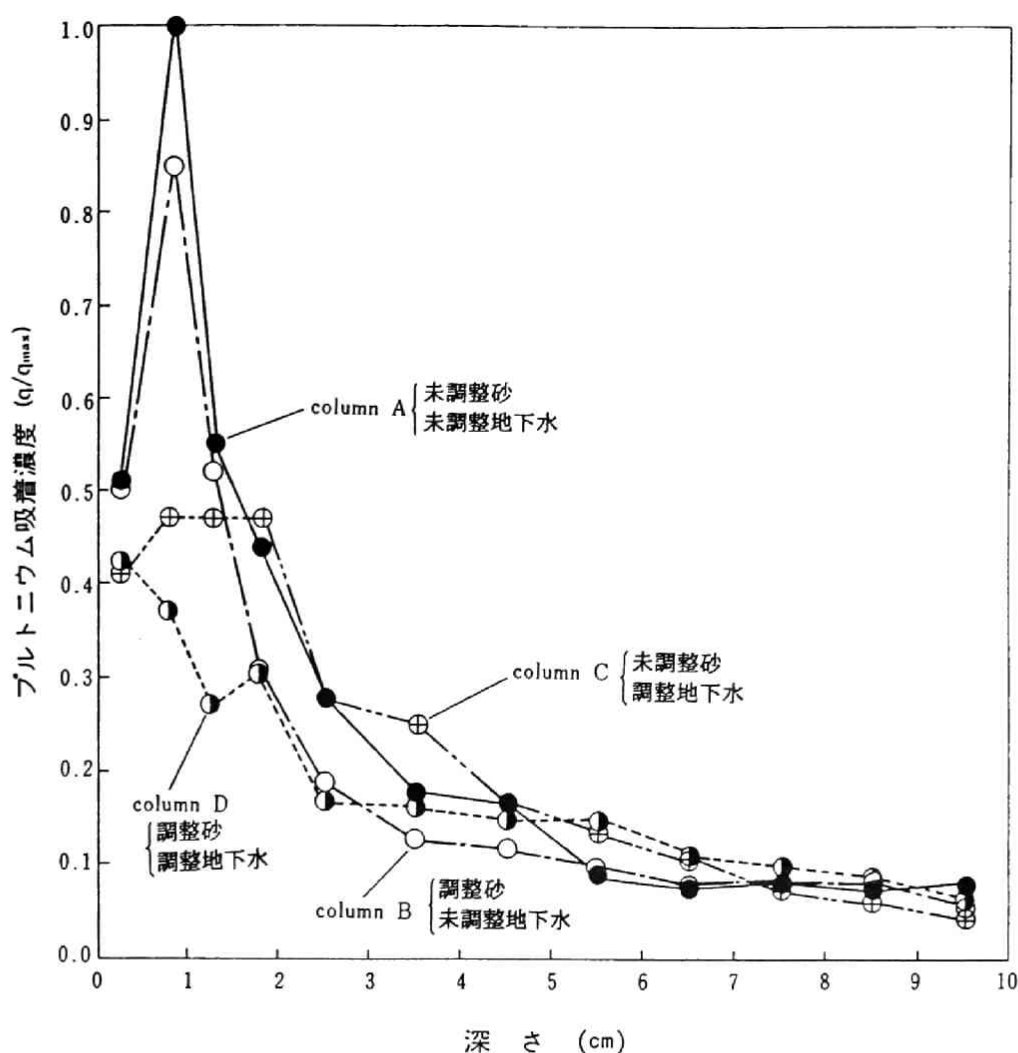


図 3-17 砂質土壌カラムでのプルトニウム移動に及ぼす微細土壌粒子と
地下水中懸濁物質の影響（実験条件は表 3-4 参照）

から整理してみると、プルトニウムの地中移行に影響を与える程度の大きさでは、地下水中懸濁物（Suspended matter）の影響が大きいことを示唆している。

カラム A、B での吸着分布では、図 3-16 に示すように最高濃度はカラム上端より 1 cm 深さにピークがある。これは、Pu 溶液通水後 Pu を含まない地下水でカラムを洗浄したことによりカラム最上端にあった Pu 高濃度吸着帯（懸濁物 $> 0.45 \mu\text{m}$ ）に吸着されたり、それらを核としてポリマー化した Pu が、下方に流下したことによるものと思われる。一方、カラム C では、Pu 溶液通水後 Pu を含まない地下水でカラムを洗浄することにより Pu の高濃度帯が下方に移動しているが、カラム A、B ほどカラム上端との濃度差は顕著ではない。これは、カラム C に含まれている微細粒子 (< 0.155

mm) に吸着されている Pu が微細粒子の流下に伴って下方へ移動したと思われる。また、カラム D ではこのような傾向は一切見られなかった。これらカラム A、B、C、D 内の Pu 濃度分布結果を総合的に判断すると、イオン交換以外に地下水中に含まれる懸濁物質に吸着された Pu、あるいはそれらを核としてポリマー化した Pu が、土壌粒子間隙間で捕捉されたり沈着することにより、土壌中での Pu の移動性は著しく小さくなる。一方、懸濁物質を含まない地下水中では、Pu の懸濁物質への吸着やポリマー化は小さく、その分だけ Pu の土壌中での捕捉の割合は小さくなり移動性は高くなるものと考えられる。これらの傾向は、プルトニウムの低濃度吸着帯の広がり方の違いに大きく反映されている。さらに、カラム流出液中に含まれる流出プルトニウム濃度は、地下水中懸濁物質を除去した調整地下水の場合の方が、未調整地下水の場合よりも約 2 倍以上高い結果を与えている。プルトニウムを含むカラム C、D からの流出液と微細粒子を含んだ未調整砂質土を用いてプルトニウムの 2 次分配係数を測定した。カラム C 流出液を用いた場合には、砂質土に対する分配係数は 93 ml/g (pH=7.8) であり、カラム D 流出液を用いた場合、同じ砂質土に対する分配係数は 63 ml/g (pH=8.0) であった。これらの結果は、未調整地下水で作った ^{239}Pu 溶液を用いて同じ砂質土に対し測定された分配係数 (5×10^3 ml/g pH 8.0) よりも 50~100 倍小さなものであった。このことは、プルトニウムは地中移動中に移動性の高いプルトニウムが吸着性の高いプルトニウムから分離されて他のプルトニウムよりも速く移動すること、つまり移動性の高いプルトニウムが地中環境内で生じることを示唆している。

移動性の高いプルトニウムの化学形態を TTA-キシレンあるいはメチル・イソブチル・ケトン抽出および $\text{Zr}(\text{IO}_3)_4$ 共沈法によって分離し調べた結果を図 3-18 に示す。カラム C、D へ供給した調整地下水で造った ^{239}Pu 原液 (62 pCi/ml、pH=7~8 で 50 日養生) 中の ^{239}Pu の 60% は、ポリマー状のプルトニウムであり、残り 23% と 17% の各々が還元状態プルトニウム Pu (III+IV 価) と酸化状態プルトニウム Pu (V+VI 価) であった。またカラム C からの流出液 (18.4 pCi/ml) 中のプルトニウムは、90% が Pu (III+IV 価) で 10% が Pu (V+VI 価) であった。カラム D からの流出液 (22.7 pCi/ml) 中のプルトニウムの 94% が Pu (III+IV 価) であり、残り 6% が Pu (V+VI 価) であった。さらに、カラム C、D からの流出液を使った 2 次分配係数測定後の吸着平衡液相中では、カラム C 流出液中プルトニウムの 100% が Pu (III+IV 価) であり、カラム

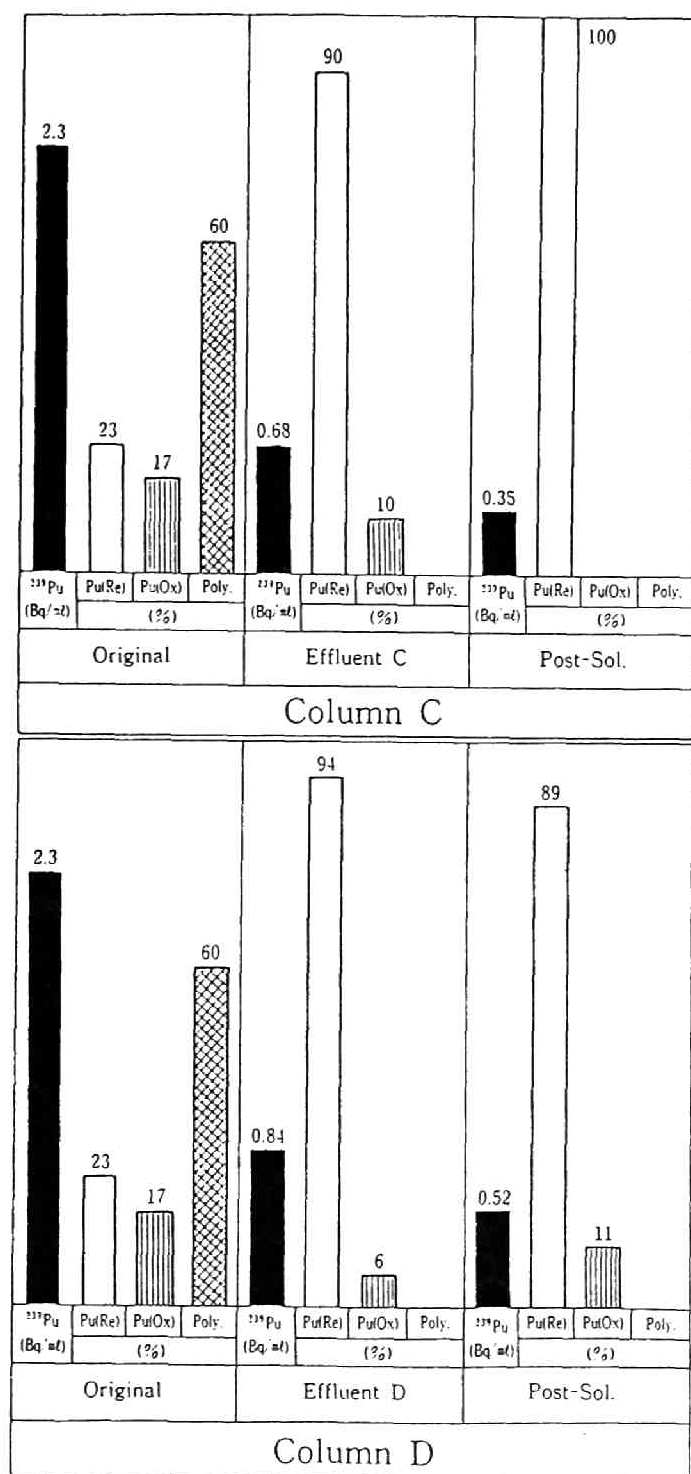


図 3-18 プルトニウム溶液中のプルトニウムの酸化還元状態

Original ; プルトニウム原液, Effluent C ; カラム C の流出液,
 Post-Sol ; カラム C および カラム D の流出液と新鮮な砂質土を
 用いてバッチ法にて 2 次分配係数を測定した後の上澄溶液,
 Effluent D ; カラム D の流出液,

Pu(Re) ; 還元状, Pu(ox) ; 酸化状態 Pu, Poly ; ポリマー Pu

D流出液中プルトニウムの89%がPu(Ⅲ+Ⅳ価)残り11%がPu(V+Ⅵ価)であった。

プルトニウムは、pH中性領域ではポリマー化が進行し、生成したポリマー状のプルトニウムは地中移動中に容易に土壤に吸着し液相より除去される。また、従来酸化状態Pu(V+Ⅵ価)は還元状態Pu(Ⅲ+Ⅳ価)に比べ移動性が高いとBondittie⁽⁵⁰⁾やNelson⁽⁴²⁾によって報告されてきたが、今回の実験結果からは必ずしもPu(V+Ⅵ価)がPu(Ⅲ+Ⅳ価)よりも移動性が高いという確認は出来なかった。むしろ、地中環境内でのプルトニウムの移動性の大きさに重大な影響を与える因子としては、地下水中に懸濁している物質であるとの結論を得た。

3.3.4 結論

一連の室内実験を通じ、以下の結論を得た。

- (1) 砂質土およびシルト・ローム土壤に対するPu(Ⅳ価)の分配係数は、溶液のpH>6の場合、急激に大きくなり 10^3 ml/g を越える。その原因としては、水酸化物等との共沈やプルトニウム・ポリマーの形成によると考えられる。
- (2) シルト・ロームに対する分配係数の大きさは、バッチ法で測定されたものとカラム法で推定されたものとはきわめてよい一致を見た。カラムへ供給された ^{239}Pu のほとんどは土壤カラムの上層部分に吸着されており、希薄濃度の ^{239}Pu がカラム端にまで広がり、一部は流出液中に流出していた。これらの結果は、室内実験のように小規模な模擬地中環境内でも移動性の高いプルトニウム(mobile plutonium)の分離が生じることを示唆している。
- (3) 室内実験で測定されたプルトニウムの分配係数は、フォールアウトプルトニウムを活用してフィールドで測定されたプルトニウムの分配係数よりも1桁大きなものであった。この違いは、プルトニウムの化学形の違いやポリマー化の違いによるものと考えられる。
- (4) プルトニウムの地中移行に大きな影響を与える因子としては、土壤中微細粒子よりも地下水中の溶存懸濁物質であることが明らかとなった。
- (5) 地中移行中に少量ではあるが移動性の高いプルトニウムが生成され、それらの分配係数は、通常のプルトニウムの分配係数の1/100 以下であった。これら移動性の高い

プルトニウムは、地中移行時に移動性の低いプルトニウムから分離され、遠くまで容易に地下水によって輸送される危険性を含んでいる。

3.4 フィールドにおけるプルトニウムの移動性

3.4.1 研究の背景と目的

プルトニウムの環境条件下での存在状態を図 2-17に示したpH-Ehダイアグラムを基に Pu の存在状態を推定すると、通気層を含む浅層地下水環境（酸化）条件下では、 $\text{PuO}_2^+(\text{Pu}(\text{V})\text{価})$ として存在するものと考えられている。実際 Rai等⁽⁵³⁾は PuO_2 あるいは $\text{Pu}(\text{OH})_4$ と蒸留水を接触させて調べた結果、大部分の液相中の溶存種は Pu(V)であると確認した。さらに、Nelson等⁽⁵²⁾によれば、Pu(V+VI)の分配係数は、(Pu(V+VI)のそれよりも 1/100～1/1000程小さく地中での Pu(V+VI)の移動性は高いと述べている。しかし、Pu(V+VI)の分配係数ですらその大きさは、 $10^3 \sim 10^4(\text{ml/g})$ で、他核種に比べやはり一般に Pu の環境中での移動性は小さいといえよう。しかしながら天然に存在する有機物と Puは 錯体を形成し移動性が高くなることも報告されている⁽⁵⁴⁻⁵⁶⁾。これらのことを考慮しながら前章2.3.3と前節3.3の結果を眺めると、前章2.3.3では、フォールアウト Puの通気層内での分布をもとに Puの大部分(90～97%)が地表面近傍(～50cm以浅)に保持されているが、わずかではあるが 残りの3～10%程度の Puが、これら Puよりも速く地中を移動していることを述べた。また、前節3.3では、Pu(VI)を用いたトレーサ実験において Pu(VI)がきわめて大きな分配係数を持ち、地下水中に懸濁物質が含まれているような実際の一般的環境条件下では、Puの移動性は著しく小さくなることが判ったが、このトレーサ試験においても、わずかな量の Pu(1%未満)が、カラムからの流出液中に存在し、これら流出液中の Puの分配係数は Pu(VI)のそれよりも 1/100ほど小さなものであった。これらの結果は、移動性の高いプルトニウム(mobile plutonium)の存在を示唆している。一方、室内実験において移動性の高いプルトニウムの存在は、他にも Sherman等⁽⁴³⁾によって花崗岩中でのプルトニウム、アメリシウムの移動実験によっても示唆されている。また、フィールドでは Sherman 等⁽⁵⁷⁾の調査によれば、Los Alamosと Chalk River の放射性廃棄物処分場で処分されたプルトニウムの約1%が 他よりも速く地中を移動していると 報告されている。Olsen等⁽⁴⁶⁾は、オークリッジの液体廃棄物処分施設周辺の地下水や土壌中

にプルトニウムを含むアクチナイド元素が数多く見出され、それらの一部は土壤に含まれる有機物、とりわけ高分子の腐植物と結合し溶存体を形成していると報告している。これらの多くは、人工キレート剤等化学物質と共に処分されたケースも多く、必ずしも自然環境条件下での移動性の高いプルトニウム生成の主因とばかりは、言いきれない面もある。一方、底質内でのプルトニウムの移動性については、その多くが、海洋の底質内での鉛直分布を基に論じられている。これらの研究の中では、プルトニウムの移動性については、多くの研究者（Koide等⁽⁵⁸⁾、Carpenter and Beasley⁽⁴⁶⁾、Aston and Stanners⁽⁵⁹⁾、Beasley et.al.⁽⁶⁰⁾、Scott et al.⁽⁶¹⁾）が、プルトニウムの移動性は、酸化還元条件の変化によっても無視できるほど小さいと述べている。逆にLivingston等⁽⁶²⁾やBowen等⁽⁶³⁾は、プルトニウムは底質中では移動性が高いと主張している。また、その中間的立場としてSantschi⁽⁶⁴⁾やCochran⁽⁶⁵⁾は、プルトニウムは平均的には移動性は低い、ごくわずかながら移動性の高い部分があると述べている。以上のように、環境中のプルトニウムについてはその移動性についてはまだ論議が尽くされておらず、その結論が出るには至っていない。本節では、著者等が行ったフォールアウトプルトニウムを対象としたフィールド調査の結果から、フィールドにおけるプルトニウムの移動性について見解を述べる。

3.4.2 調査地点と調査方法

底質を対象とした調査は、1945年原爆の際大量の局地フォールアウトが降下した西山地区にある西山貯水池（1904年竣工）の3地点S A（水深2 m）、S B（水深10 m）、S C（水深30 m）および、原爆フォールアウトよりもグローバルフォールアウトの影響を強く受けた長崎市南東部にある、小ヶ倉貯水池（1926年竣工）のKA（水深20 m）において1982年11月～1984年10月に採取した（図2-18参照）。未攪乱底質コアのサンプリング方法は、ダイバーを使いアクリルパイプ（ $\phi = 38 \sim 81 \text{ mm}$ ）を静かに底質中に押し込み、上部をゴム栓によって密封したあと、乱さないように抜き取り底部に底質の落下を防ぐためにキャップをかぶせ船上に引上げた。採取したコアは、実験室に持帰り -10°C で冷凍させた後、所定の長さ（1～3 cm）に切断し、含水量および底質重量を測定した。各底質試料中の $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{137}Cs および ^{210}Pb の濃度を測定し鉛直分布を調べた。

3.4.3 調査結果と考察

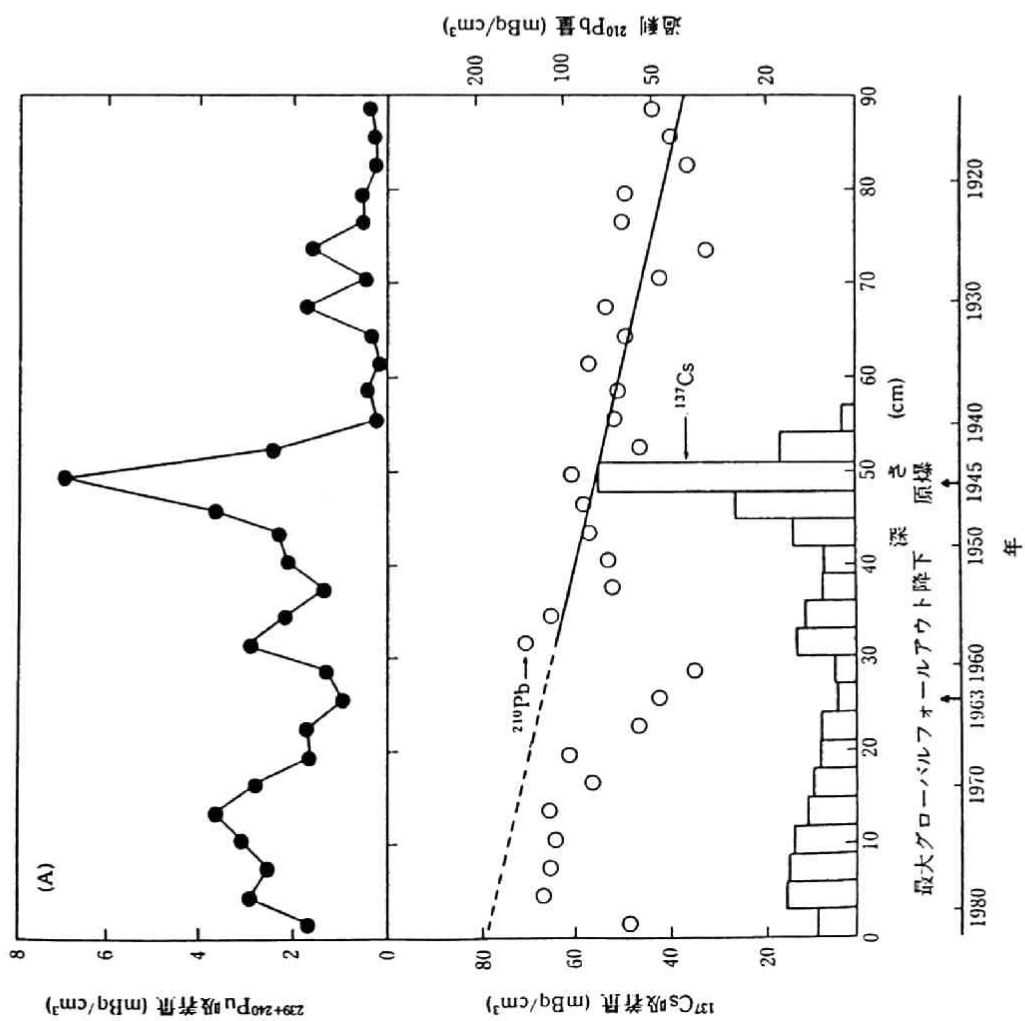
(1) フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{137}Cs および ^{210}Pb の底質コア内での鉛直分布

西山貯水池底質コア SA、SB、SC および 小ヶ倉貯水池底質コア KA 内の $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{137}Cs の濃度分布を表3-5に示す。 $^{239+240}\text{Pu}$ および ^{137}Cs の濃度ピークがコア SA では底質表面から45~51cmの深度に、コア SB では29~31cmの深度に、コア SC では24~26cmの深度に存在しており、このピークが1945年の長崎原爆の局地フォールアウトによるものと考えられる。その理由は、各ピークの $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 比が、0.12~1.30の範囲にあり、グローバルフォールアウトの比0.01~0.02より著しく大きいこと、および ^{210}Pb 測定による底質堆積速度から推定した堆積年代ともほぼ一致している（図3-19）からである。一方、小ヶ倉貯水池底質コア KA では、 $^{239+240}\text{Pu}$ のピークはあまり明瞭でなく、それとは対照的にグローバルフォールアウトに起因する ^{137}Cs の大きなピークが深度14~16cmに存在している。また、KA コアの28~30cm深度に、非常に小さいながら、 $^{239+240}\text{Pu}$ のピークが見られる。この小ピークは ^{210}Pb 法によって推定した堆積年代から1945年頃で、長崎原爆の局地フォールアウトの影響と考えられる。この小ピークでは、 $^{239+240}\text{Pu}$ 以外には、 ^{137}Cs は検出されないことから、局地フォールアウトの降下範囲は、気候条件等によってきわめて狭い範囲に限定され、ホットスポットである西山以外ではその降下量は小さく、そのために半減期の長い $^{239+240}\text{Pu}$ は検出されるが、 ^{137}Cs は放射崩壊によって検出限界以下に減衰してしまったものと見られる。KA コアに含まれる $^{239+240}\text{Pu}$ の中で、1945年の原爆フォールアウトの寄与を表3-5の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度分布をもとに推定すると、全 $^{239+240}\text{Pu}$ 中の10%程度である。

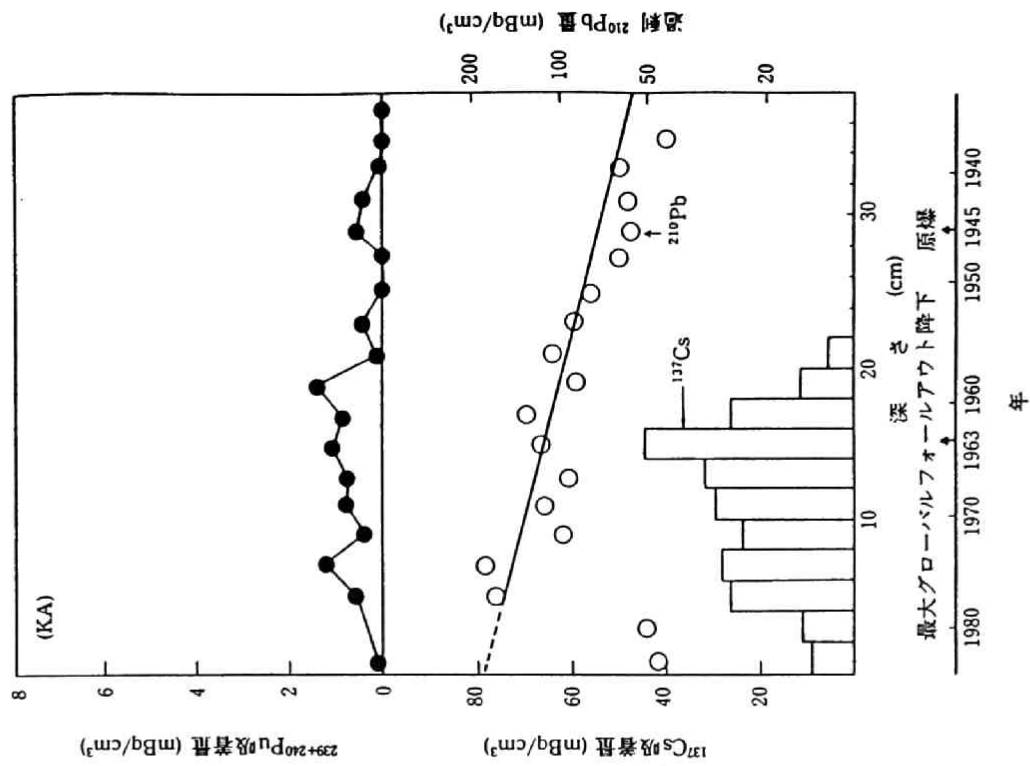
西山コア SA では、底質表面から30cm深さまでの ^{210}Pb 濃度が大きく乱れほぼ均一化されており、期待されたグローバルフォールアウト ^{137}Cs のピークが見出されないことから、湖底で大きな混合現象が生じたものと考えられる。一般に ^{210}Pb の局所的な濃度の均一が、主に洪水等の外乱によることは知られている^(66,67)、コア SA の場合にこの大きな ^{210}Pb の乱れの原因としては、コア採取の4ヶ月前の1982年7月の集中豪雨（3時間で448mm）による大洪水をあげることができる。この時期の ^{210}Pb の乱れは、その程度の差こそあれ他のコアにおいても同様にみられることから、前記の洪水の影響が底質中に記録保存されることを裏付けている。

表3-5 西山貯水池底質(コア-SA, SB, SC)と小ヶ倉貯水池底質(コア-KA)内の $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs 濃度分布

西山貯水池												小ヶ倉貯水池			
Core-SA				Core-SB				Core-SC				Core-KA			
Depth (cm)	Dry Bulk Density (g/cm)	^{137}Cs (pCi/g)	$^{239+240}\text{Pu}$ (pCi/g)	Depth (cm)	Dry Bulk Density (g/cm)	^{137}Cs (pCi/g)	$^{239+240}\text{Pu}$ (pCi/g)	Depth (cm)	Dry Bulk Density (g/cm)	^{137}Cs (pCi/g)	$^{239+240}\text{Pu}$ (pCi/g)	Depth (cm)	Dry Bulk Density (g/cm)	^{137}Cs (pCi/g)	$^{239+240}\text{Pu}$ (pCi/g)
0-3	0.706	0.322±0.033	0.063±0.012	0-1.5	0.776	0.341±0.042	0.108±0.098	0-2	0.548	0.371±0.064	0.136±0.040	0-2	0.497	0.477±0.042	0.007±0.002
3-6	1.054	0.384±0.037	0.074±0.005	1.0-3.5	0.786	0.374±0.032	0.094±0.015	2-4	0.508	0.336±0.055	0.158±0.050	2-4	0.514	0.537±0.050	0.009±0.001
6-9	1.071	0.367±0.035	0.054±0.005	3.5-5.5	0.840	0.426±0.040	0.160±0.021	4-6	0.452	0.459±0.073	0.119±0.020	4-6	0.626	1.153±0.070	0.022±0.003
9-12	0.943	0.396±0.027	0.080±0.011	5.5-7.5	0.942	0.419±0.039	0.115±0.011	6-8	0.323	0.621±0.091	0.120±0.032	6-8	0.613	1.252±0.075	0.053±0.010
12-15	1.040	0.286±0.032	0.087±0.005	7.5-9.5	0.770	0.516±0.043	0.049±0.020	8-10	0.377	0.707±0.076	0.232±0.022	8-10	0.495	1.272±0.072	0.017±0.007
15-18	0.932	0.276±0.031	0.035±0.011	9.5-11.5	0.775	0.528±0.055	0.199±0.019	10-12	0.393	1.200±0.134	0.310±0.043	10-12	0.551	1.450±0.077	0.039±0.006
18-21	0.942	0.218±0.028	0.041±0.004	11.5-13.5	0.654	0.455±0.046	0.135±0.020	12-14	0.470	1.237±0.117	0.374±0.079	12-14	0.393	2.147±0.095	0.046±0.006
21-24	1.012	0.204±0.028	0.048±0.008	13.5-15.5	0.822	0.478±0.047	0.096±0.010	14-16	0.559	1.085±0.103	0.586±0.058	14-16	0.503	2.405±0.101	0.067±0.004
24-27	0.642	0.175±0.028	0.037±0.004	15.5-17.5	0.862	0.395±0.049	0.143±0.019	16-18	0.442	1.194±0.119	0.699±0.044	16-18	0.516	1.372±0.077	0.041±0.010
27-30	0.612	0.221±0.028	0.047±0.004	17.5-19.5	0.808	0.478±0.045	0.207±0.016	18-20	0.407	1.685±0.141	0.438±0.070	18-20	0.480	0.596±0.058	0.079±0.009
30-33	1.153	0.307±0.025	0.062±0.014	19.5-21.5	0.777	0.542±0.048	0.102±0.013	20-22	0.433	1.468±0.144	0.502±0.035	20-22	0.433	0.338±0.033	0.006±0.003
33-36	0.930	0.319±0.025	0.070±0.009	21.5-22.5	0.946	0.627±0.050	0.116±0.008	22-24	0.475	1.015±0.113	0.791±0.043	22-24	0.512	N.D	0.022±0.006
36-39	0.721	0.271±0.024	0.049±0.006	22.5-23.5	0.841	0.717±0.057	0.155±0.014	24-26	0.420	1.470±0.147	0.925±0.130	24-26	0.510	N.D	N.D
39-42	0.770	0.252±0.081	0.049±0.009	23.5-24.5	0.902	0.822±0.058	0.116±0.012	26-28	0.624	1.006±0.076	1.327±0.093	26-28	0.536	N.D	N.D
42-45	0.832	0.448±0.026	0.069±0.009	24.5-25.5	0.976	0.878±0.060	0.150±0.009	28-30	0.562	0.278±0.059	1.047±0.012	28-30	0.498	N.D	0.027±0.008
45-48	0.662	1.069±0.057	0.133±0.035	25.5-26.5	0.954	0.895±0.058	0.160±0.012	30-32	0.526	N.D	0.080±0.016	30-32	0.429	N.D	0.024±0.004
48-51	1.025	1.448±0.071	0.174±0.009	26.5-27.5	0.910	1.172±0.060	0.164±0.014	32-34	0.638	N.D	0.288±0.075	32-34	0.444	N.D	0.002±0.000
51-54	0.689	0.657±0.030	0.086±0.012	27.5-28.5	0.905	1.468±0.072	0.237±0.020					34-36	0.477	N.D	0.0003±0.000
54-57	0.930	0.072±0.017	0.005±0.004	28.5-29.5	1.220	1.243±0.072	0.226±0.025					36-38	0.475	N.D	0.001±0.000
57-60	0.961	N.D	0.011±0.005	29.5-31.5	0.990	0.637±0.050	0.242±0.018								
60-63	1.026	N.D	0.004±0.002	31.5-33.5	1.278	0.258±0.038	0.096±0.014								
63-66	0.800	N.D	0.012±0.003	33.5-35.5	0.784	0.096±0.028	0.026±0.006								
66-69	1.062	N.D	0.046±0.004	35.5-37.5	1.105	N.D	0.011±0.003								
69-72	0.901	N.D	0.004±0.002	37.5-39.5	1.278	N.D	0.003±0.001								
72-75	0.732	N.D	0.053±0.008	39.5-41.5	0.982	N.D	0.012±0.003								
75-78	0.943	N.D	0.015±0.006	41.5-43.5	0.700		0.027±0.005								
78-81	0.963	N.D	0.009±0.004												
81-84	0.834	N.D	0.006±0.003												
84-87	1.004	N.D	0.005±0.002												
87-90	1.133	N.D	0.006±0.003												



西山コア-SA



小ヶ倉コア-KA

図 3-19 西山コア-SAと小ヶ倉コア-KA内での ²¹⁰Pb, ¹³⁷Cs と ²³⁹⁺²⁴⁰Pu

濃度分布とファールアウト降下年代

(2) 底質中でのプルトニウムの移動性

底質中での核種の移動について論じる際、核種の移動の大きさを表わす指標として、底質の混合の大きさと核種の濃度勾配による分子拡散効果とを合せた粒子混合係数 (particle mixing coefficients) が用いられる。一般に、底質への吸着性の高い核種 ($k_d=10^3$ を超える ^{137}Cs や $^{239+240}\text{Pu}$) の場合には、底質内での移動は、底質粒子そのものの堆積時の混合によってきまり、分子拡散は無視できる程度である。コアー S A、S B、S C には、それぞれ原爆フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs のシャープなモノピークが含まれているので、西山貯水池の底部での平常時の粒子混合係数を野崎⁽⁶⁸⁾ が噴火湾での火山噴火時に放出されたパミスの堆積状態より粒子混合係数を求めたのと同じ手法 (拡散係数に対する Crank⁽⁶⁹⁾ の近似式)

$$\sigma = \sqrt{2 D_P t} \quad \dots\dots\dots (3-4)$$

ここに σ : 拡散巾 (cm)

D_P : 粒子混合係数 (cm^2/y)

t : 経過時間 (y)

を使って、粒子混合係数を推定した。図 3-20~3-22 に S A、S B、S C コアー内の Pu および ^{137}Cs 原爆ピークを基に拡散巾 σ と D_P を求めた関係を図示する。粒子混合係数は、コアー S A、S B、S C に対し 各々 0.12、0.08、0.078 cm^2/y であり、Cochran 等⁽⁶⁵⁾ が海洋で推定した粒子混合係数 0.03~0.4 cm^2/y とあまり大差のない結果となった。 $^{239+240}\text{Pu}$ の堆積後の底質内での再移動について、ここで求めた $^{239+240}\text{Pu}$ の分子拡散を考慮した粒子混合係数を用いて、次式で表される拡散方程式で評価する。

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho C) = \frac{\partial}{\partial Z}(\rho D_P \frac{\partial C}{\partial Z}) - \frac{\partial}{\partial Z}(\rho \bar{A} C) - \lambda \rho C \quad \dots\dots\dots (3-4)$$

ここに t : 経過時間 (y)

C = 底質中 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度 (pCi/g)

D_P = 粒子混合係数 (cm^2/y)

Z = 底質表面からの底質層内での深さ (cm)

\bar{A} = 底質堆積速度 (cm/y)

ρ = 底質の乾燥みかけ密度 (dry Sediment g/ cm^3)

λ = Pu の崩壊定数 (y^{-1})

正 規 確 率 紙

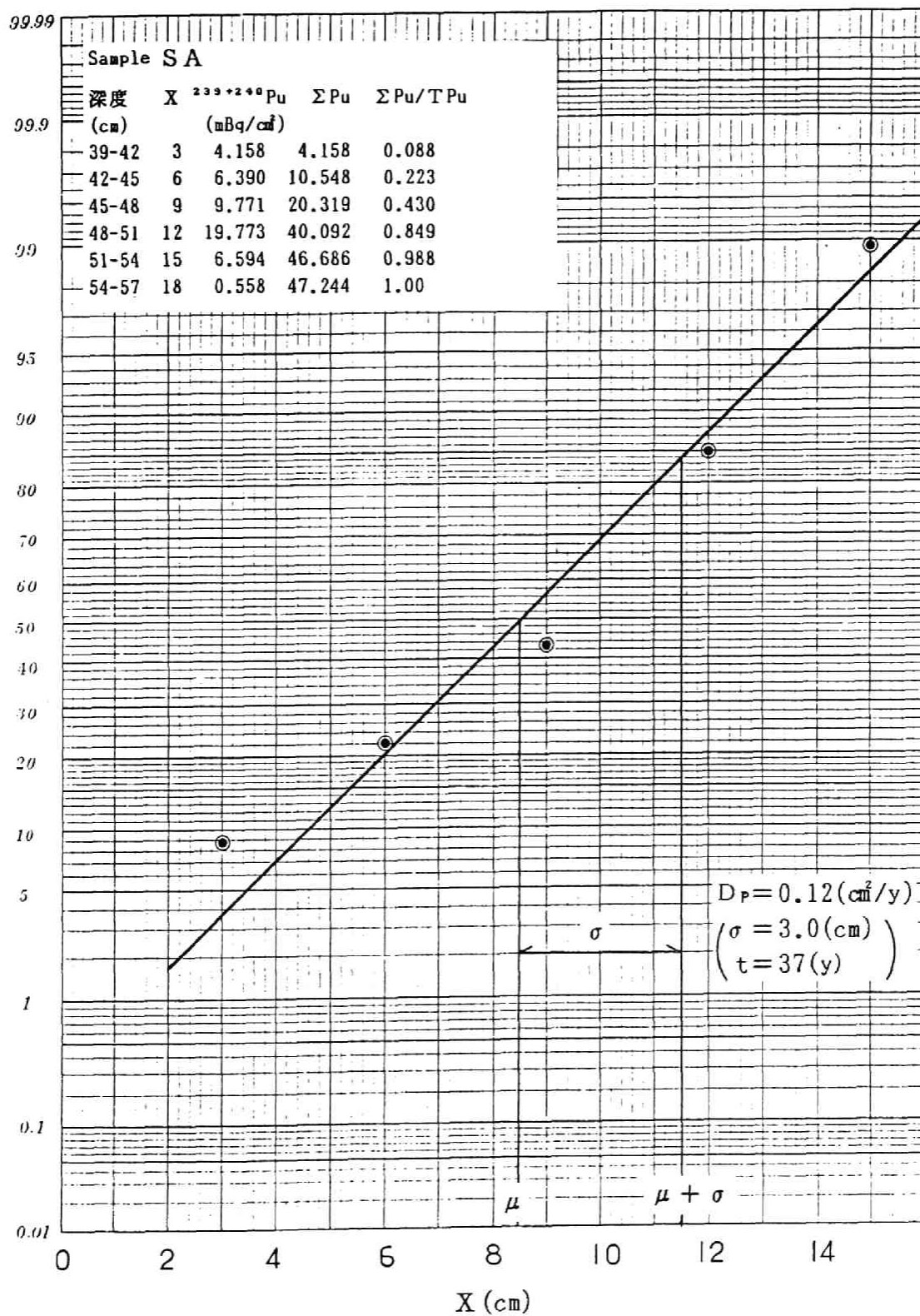


図 3-20 コア-S Aにおける粒子混合係数 (D_p) の推定

正 規 確 率 紙

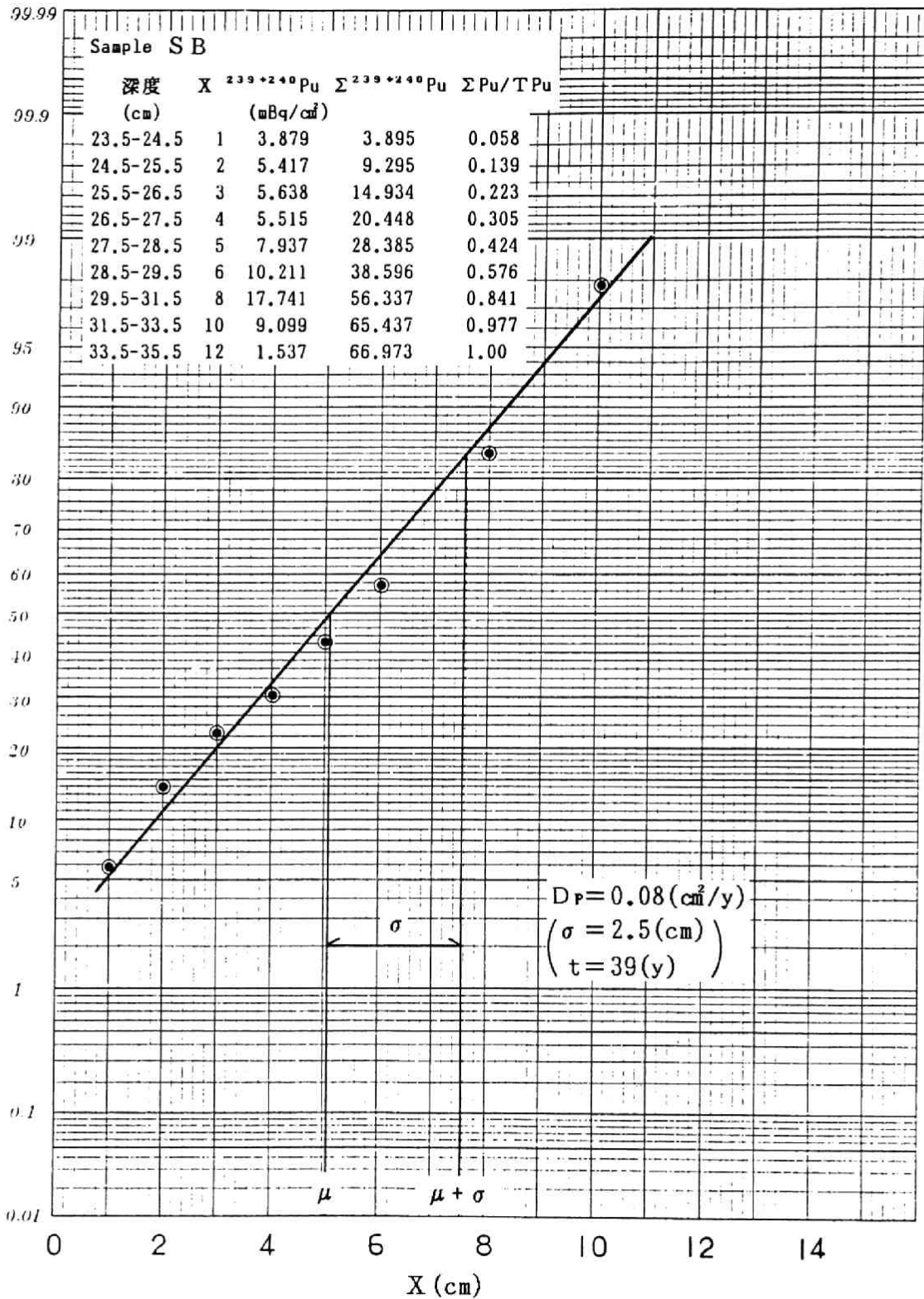


図 3-21 コア-S Bにおける粒子混合係数 (D_p) の推定

正 規 確 率 紙

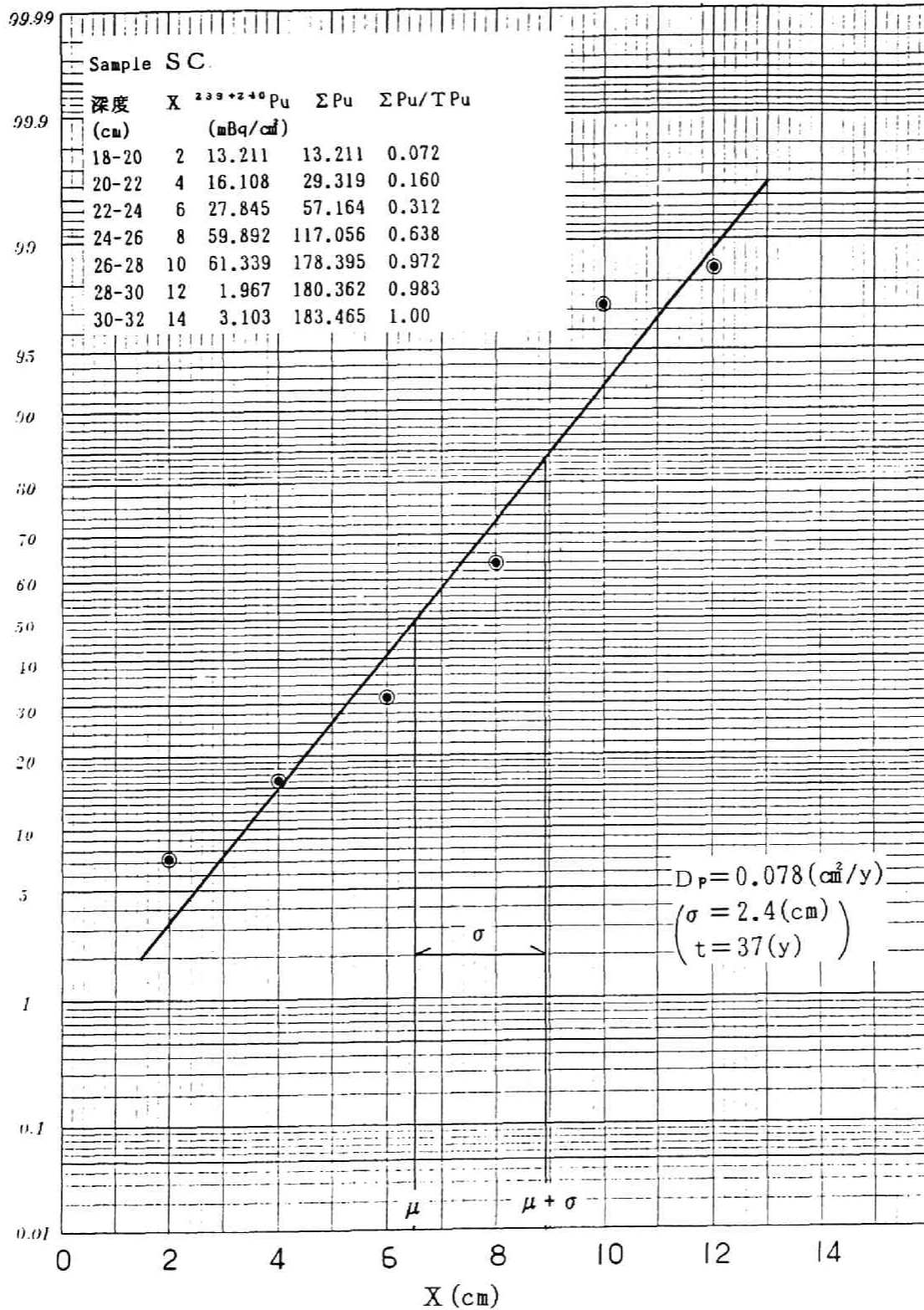


図 3-22 コアー SC における粒子混合係数 (D_p) の推定

コアーS A、S B、S C内の $^{239+240}\text{Pu}$ の濃度分布を計算するために、粒子混合係数としては、実測された $D_p=0.07\sim0.12(\text{cm}^2/\text{y})$ 、堆積速度としては コアーS Aに対し $A=1.32(\text{cm}/\text{y})$ 、コアーS Bに対し $A=0.73(\text{cm}/\text{y})$ 、コアーS Cに対し $A=0.7(\text{cm}/\text{y})$ を用いる。 $^{239+240}\text{Pu}$ の降下量と降下時期としては、西山と小江原の陸上土壤中の全降下 $^{239+240}\text{Pu}$ 量を比較する（西山 $=5.91\text{pCi}/\text{cm}^2$ 、小江原 $=0.18\text{pCi}/\text{cm}^2$ ）ことにより1945年に降下した原爆フォールアウトの寄与率は底質中の全プルトニウムの97%、また、グローバルフォールアウトによって与えられた寄与率は底質中の全プルトニウムの3%であると推定した。また議論を簡単にするために グローバルフォールアウトの降下時期は1963年に全量が降下したものと考えて、インプットした。

コアーS A、S B、S C内の実測した $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度分布と、計算によって解析的に求めた $^{239+240}\text{Pu}$ の分布を図 3-23～3-25に示す。この結果を見ると、各コアー内での $^{239+240}\text{Pu}$ の分布形状は、実測および解析結果とも比較的良く一致している。但し、コアーS Aの $Z=0\sim30\text{cm}$ とS Bの $Z=0\sim16\text{cm}$ では、実測結果と解析結果との間に大きな隔りがあるが、これは、前述の洪水による大きな混合の結果である。コアーS B（Z

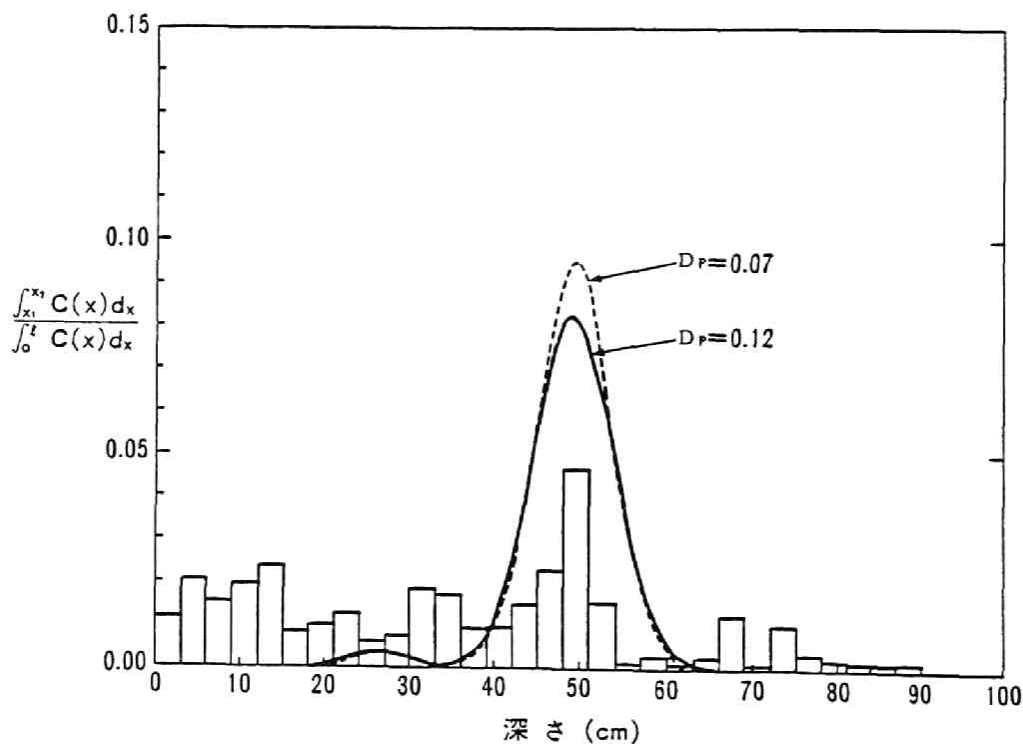


図 3-23 底質コアーS Aにおけるフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ 分布と理論分布曲線
(D_p ; 粒子混合係数)

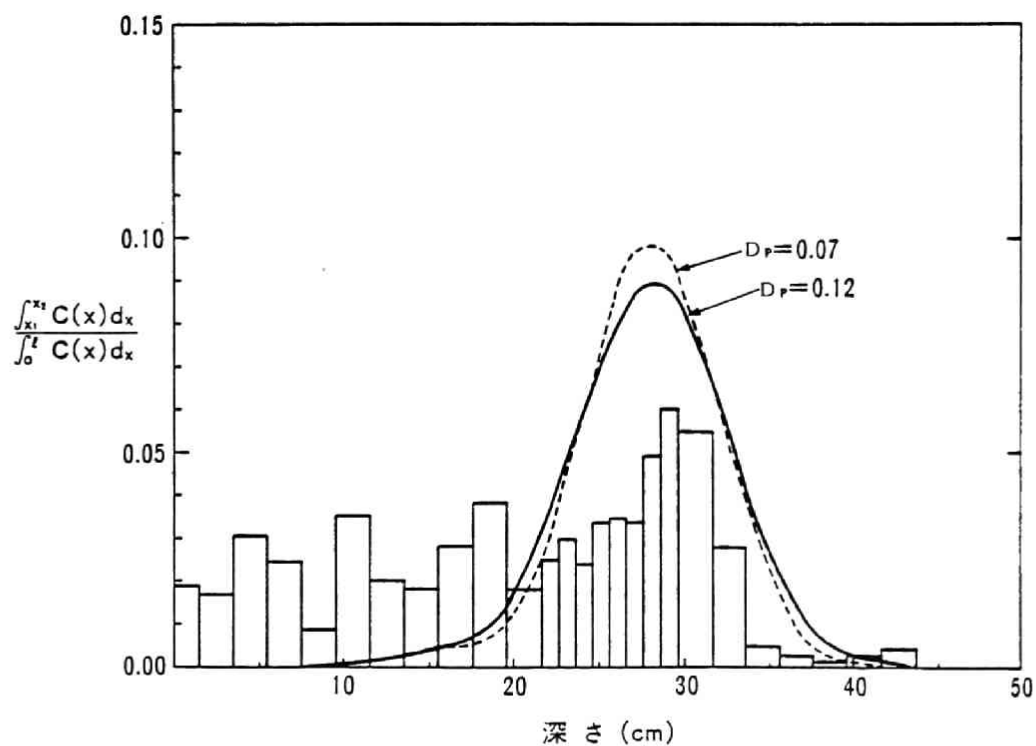


図 3-24 底質コア-SBにおけるフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ 分布と理論分布曲線
(D_p ; 粒子混合係数)

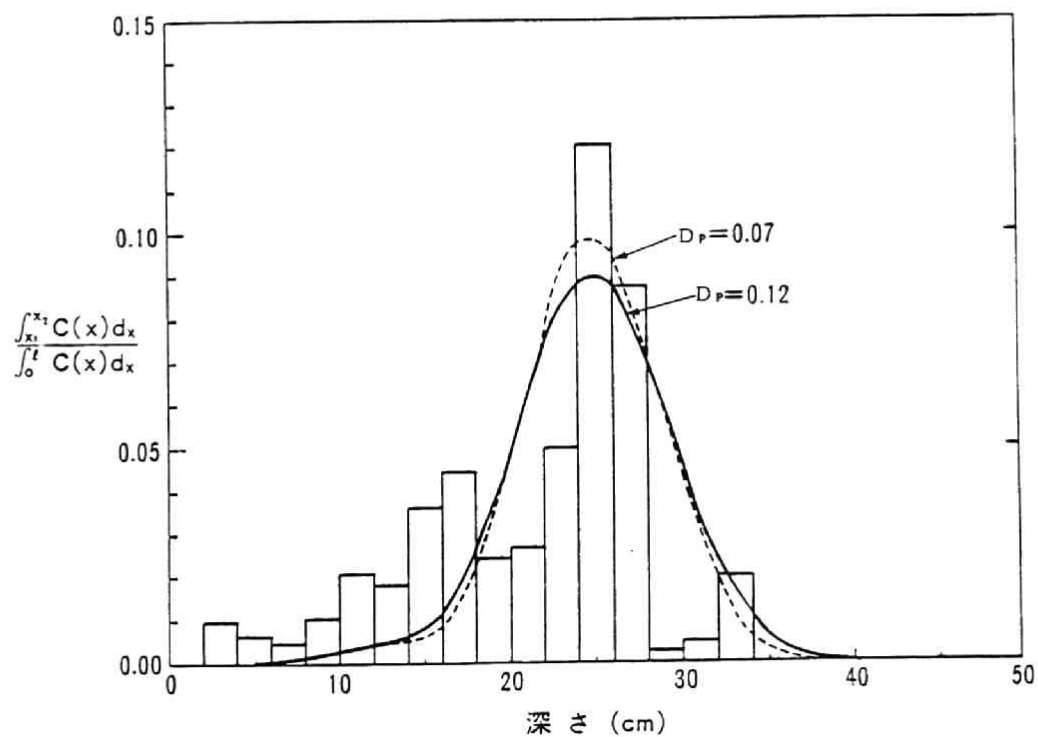


図 3-25 底質コア-SCにおけるフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ 分布と理論分布曲線
(D_p ; 粒子混合係数)

=36~44)とSC($Z=30\sim34$)の1945年の原爆ピークより深い位置に含まれる $^{239+240}\text{Pu}$ は、解析の結果、粒子混合と $^{239+240}\text{Pu}$ の分子拡散による影響範囲に含まれている。したがってコアーSB、SCでは、採取したコアーの長さが不十分であったために、移動性の高い $^{239+240}\text{Pu}$ の存在は確認されなかった。一方、コアーSAの深さ($Z=65\sim90$ cm)に含まれる $^{239+240}\text{Pu}$ は、粒子混合と分子拡散の影響範囲を超えて $^{239+240}\text{Pu}$ が移動しており、移動性の高いプルトニウムの存在を示唆している。特に拡散範囲を超えて $^{239+240}\text{Pu}$ が検出された深度では、移動性の小さい ^{137}Cs は全く検出されておらず、生物あるいは物理的な要因による混合や拡散による影響と考えることは困難である。この結果を基に、移動性の高い $^{239+240}\text{Pu}$ の割合を推定すると、それは、控え目に見積っても全降下プルトニウムの約10%程度と思われる。

3.4.4 結論

貯水池底質内のフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{137}Cs および ^{210}Pb の濃度分布を調査することにより以下の結論を得た。

- (1) 底質内では、外的な大きな混合がなければ、フォールアウト核種の降下履歴がほぼ完全に残されている場合もある。
- (2) 底質中の ^{210}Pb の鉛直分布を見ることにより過去の洪水の影響等を知ることができる。
- (3) $^{239+240}\text{Pu}$ に対する底質粒子混合係数 D_p としては、洪水等の大きな外乱がなければ $0.07\sim0.12\text{cm}^2/\text{y}$ ときわめて小さくこれは、海洋底での粒子混合係数の大きさと同程度である。
- (4) 底質中に降下堆積したフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の中で10%は、移動性の高いプルトニウムになる可能性がある。一方、 ^{137}Cs については淡水環境中ではその移動性はきわめて低く、フォールアウトの降下履歴を知る上で最適の指標となる。

3.5 まとめ

本章では、放射性核種(^{60}Co 、 $^{239+240}\text{Pu}$)の環境条件と移動性について室内実験および $^{239+240}\text{Pu}$ については、フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の環境(陸上土壌、および底質)中での降下後の再分布を調査することによりフィールド条件下での移動性について

検討した。

3.2 節では、 ^{60}Co の移動性について、塩分濃度（海水と淡水環境）の違いと 酸化還元条件（嫌気・好気条件）の違い、底質の種類（有機質の多少）と底質の相互作用時間を変化させて調べた。その結果、 ^{60}Co の移動性に大きく影響を与える環境条件としては、液相の塩分濃度と酸化還元条件であることがわかった。特に嫌気条件下で海水環境下で、 ^{60}Co の移動能が最も大きくなった。

3.3節では、 ^{239}Pu の移動性について室内実験を通じて検討した結果、 ^{239}Pu の移動性に大きく影響を与えるのは従来より述べられてきた酸化還元条件に加えて、地下水中に含まれる懸濁物質の量によることが明らかとなった。また移動性の高い ^{239}Pu は地中移動中に若干生成されることが確認された。

3.4 節では、実際にフィールド条件下で移動性の高い $^{239+240}\text{Pu}$ の存在が確認された。その割合は、全降下フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の約10%である。

放射性核種の移動性に大きく影響を与える環境条件としては、核種をとりまく環境中の酸化還元条件、塩分濃度と溶存物質の種類と量であるとまとめることが出来る。

参考文献

- (1) Means J. L., Crerar D. A. and Duguid J. O., 1978, "Migration of radio - active wastes : Radionuclide mobilization by complexing agents" , Science, 200, 1477-1481.
- (2) Means J. L., Crerar D. A., Borcsik M. P. and Duguid J. O., 1978, "Adsorp - tion of Co and selected actinides by Mn and Fe oxides in soils and sedi - ments", Geochim. Cosmochim. Acta, 42, 1763-1773.
- (3) Fowler E. B., Essington E. H. and Polzer W. L., 1979, "Interactions of Radioactive Wastes with Soils : A Review", NUREG/CR-1155. Nuclear Regula - tory Commission. 42P.
- (4) Czyscinski K. S. and Weiss A. J., 1981, "Evaluation of isotpe migration - land burial", Quarterly Progress Report. NUREG/CR-1862, Nuclear Regulatory Commission. 104P.
- (5) Cutshall N. H., Vaughan N. D., Haasa C. S., Olsen C. R. and Huff D. D., 1982, "Hydrologic and geologic aspects of low-level radioactive waste site management", Proc. Conf. on Radioactive waste Management (ed. M. Fera day) pp. 485-489.
- (6) Huff D. D., Farrow N. C. and Jones J. R., 1982, "Hydrologic fators and ^{90}Sr transport : A core study", Environ. Geol., 4, 53-63.
- (7) Kirby L. J. and Toste A. P., 1983, "Chemical characteristics, migration and fate of radionuclides at commercial shallow land burial sites", In Proc. 5th Annual Pariticipants Info. Meeting, DOE Low-level waste Manage - ment Program. pp. 609-649.

- (8) Dayal R., Pietrzak R. F. and Clinton J., 1984, "Geochemical Investigations at Maxey Flats Radioactive Waste Disposal Site", NUREG/CR-3993., Nuclear Regulatory Commission. 128 P.
- (9) Killey R. W. D., McHugh J. O., Champ D. R., Cooper E. L. and Young J. L., 1984, "Subsurface cobalt-60 migration from a low-level waste disposal site" Environ. Sci. Technol. 18, 148-157.
- (10) Rees. T. F. and Cleveland J. M., 1981, "Characterization of plutonium in waters at Maxey Flats, Kentucky, and near the Idaho chemical processing plant, Idaho", IAEA-SM-257/66, Knoxville, USA.
- (11) Bondietti E. A., 1981, "Mobile species of Pu, Am, Cm, Np and Te in the environment", IAEA-SM-257/42, Knoxville, USA.
- (12) Grisak G. E. and Jackson R. E., 1978, "An appraisal of hydrogeological processes involved in shallow subsurface radioactive waste management in Canadian Terrain", Fisheries and Environ. Canada Sci. Series 84, Cat. EN 36-502/84.
- (13) Killey R. W. D., 1981, "Long-term Strontium-90 behaviour in a sand aquifer", IAEA-SM-257/86P, Knoxville, USA.
- (14) Duguid J. O., 1979, "Hydrologic transport of radionuclide from low level waste burial grounds" in Management of Low-level Radioactive Waste, Vol. 2, PP.1119 (New York: Pergamon Press)
- (15) Mawson C. A., 1969, "Consequences of radioactive disposals into the ground", Progress in Nuclear Energy Series XII Health physics, Vol. 2,

PP.461-476(New York: Pergamon Press)

- (16) Merritt W. F. and Mawson C. A., 1973, "Retention of radionuclides deposited in the Chalk River Nuclear Laboratories Waste Management Areas", Atomic Energy of Canada Ltd. Rep. AECL-4510.

- (17) Persons P. J., 1963, "Migration from a disposal of radioactive liquid in Sand", Health Phys. 9, 333-342.

- (18) Prudic D. E. and Randall A. D., 1977, "Ground-water hydrology and subsurface migration radioisotopes at a low-level, solid radioactive-waste disposal site, West Valley, New York", U. S. Geol. Survey Open-File Rep. 77-566, P.28.

- 19) Robertson J. B., 1979, "Shallow land burial of low-level radioactive wastes in the United States-Geohydrologic and migration studies", International Energy Agency Rep. IAEA/SM-243. No.152.

- (20) Lowman, F. G., and Ting, R. Y., 1972, "The state of cobalt in seawater and its uptake by marine organisms and sediments", IAEA/SM-158#23, P.368 - 384.

- (21) Weiss, H. V., 1957, "Biological concentration by Killer clams of cobalt - 60 from radioactive fallout", Science 125, p.695.

- (22) Tiller, K. G. and Hodgson, J. F., 1962, "The specific sorption of cobalt and zinc by layer silicates", Clays and Clay Minerals 9, p.393-403.

- (23) Tiller, K. G., Hodgson, J. G., and Peech. M., 1963, "Specific sorption of cobalt by soil clays", Soil. Sci. 95, p.392-399.
- (24) Jenne, E. A., 1968, "Controls on Mn, Fe, Co, Ni, Cu and Zn concentration in soils and water: the significant role of hydrous Mn and Fe oxides", American Chemical Society Advance in Chemistry Series. 73, p.337-387.
- (25) Means, J. L., Crerar, D. A., Borcsik, M. P., and Duguid, J. O., 1978, "Radionuclide adsorption by manganese oxides and implications for radioactive waste disposal", Nature 274, p.44-47.
- (26) Gorham, E., and Swaine, D. J., 1965, "The influence of oxidizing and reducing conditions upon distribution of some elements in lake sediments", Limnol. Oceanog. 10, p.268-279.
- (27) 井上頼輝、森沢真輔、馬原保典、1975、"通気層における放射性核種の移動(1)", 日本原子力学会誌、vol.17 , p.376-384.
- (28) Filipovic, Z., Stankovic, B., and Dusic, Z., 1961, "Distribution of Cu, Pb, Zn, Ni, and Co in soil in relation to soil pH changes", Soil Sci. 91, p.147-150 .
- (29) Spencer, W. F., and Tieseking, J. E., 1954, "Cobalt adsorption and release in cation-exchange system", Soil Sci. 78, p.267-276 .
- (30) Yousef, Y. A., and Gloyna, E. F., 1964, "Radioactivity transport in water the transport of ⁵ Co in aqueous environment", AEC-EHE-12-6405.

- (31) Vertacnik, A., Strohal, P., and Lulic, S., 1978, "Fixation of ^{60}Co and ^{137}Cs on natural adsorbents from phenol-polluted water", Health Phys. 36, p.491-496.
- (32) Schöllenger C. J. and Simon, R. N., 1946, Soil Sci., Vol. 59, 13.
- (33) Mahara, Y. and Kudo A., 1981, "Fixation and mobilization of ^{60}Co on sediments in coastal environments," Health Phys., 41, 645-655.
- (34) Sanchez, A. L., Schell, W. R. and Sibley, T. H., 1981, "Distribution coefficients for radionuclides in aquatic environments," NUREG/CR-1852-V5.
- (35) J. F. Duncan and G. B. Cook. 1968, Isotopes in Chemistry, 250, Oxford University Press.
- (36) Morgan J. J., and Stumm W., 1964, J. Colloid Sci., Vol. 19, 347,
あるいは、1965 Adv. Water Pollut. Res., Vol. 1, 102.
- (37) Stumm W., and Morgan J. J., 1981, "Aquatic Chemistry-An Introduction Emphasizing Chemical Equilibria in Natural Water," 780, John Wiley & Sons.
- (38) Murray, C. N., and Murray, L., 1973, Adsorption-desorption equilibria of some radionuclides in sediment fresh-water and sediment-seawater systems, IAEA-SM-15817., proc. of Radioactive Contamination of the Marine Environment, 105-122.
- (39) Nakamura K. and Nagaya Y., 1975, "Dispersion and accumulation of radionuclides in sediment of Urazoko Bay(I)," J. Oceanog. Soc. Japan, 31, 145-153.

- (40) 福井正美, 1982, 海水中での放射性核種の拡散吸着
原安協「環境における放射性核種の分布と挙動に関する研究」成果報告会予稿集
- (41) Mahara Y. and Miyahara S., 1984, "Residual Plutonium Migration in soil of Nagasaki" J. Geophy. Res., 89, B9, 7931-7936.
- (42) Mahara Y., Kudo A., Kauri T., Santry D. C., and Miyahara S., 1988, "Mobile Pu in reservoir sediments of Nagasaki, Japan", Health phys., (in press).
- (43) Rhodes D. W., 1957, "Adsorption of Plutonium by Soil", Soil Sci., 84, 465-471.
- (44) Hajek B. F., 1966, "Plutonium and Americium Mobility in Soils", Battelle Northwest Laboratory Rep. BNWL-CC-925.
- (45) Cleveland J. M. and Rees T. F., 1981, "Characterization of Plutonium in Maxey Flats Radioactive Trench Leachates", Science, 212, 1506-1509.
- (46) Olsen C. R., Lowry P. D., Lee S. Y., Larsen I. L. and Cutshall N. H., 1986 "Geochemical Environmental Processes Affecting Radionuclide Migration from a Formerly Used Seepage Trench" Geochim. Acta, 50, 593-607.
- (47) Bondientti E. A. and Trabalka J. R., 1980, "Evidence of Plutonium V in an Alkaline Freshwater Pond", Radiochem. Radioanal. Lett., 42, 169-176.
- (48) Carpenter R. and Beasley I. M., 1981, "Plutonium and Americium in Anoxic Marine Sediments: Evidence against remobilization". Geochim. Cosmochim. Acta, 45, 1917-1930.

- (49) Sherman F., Friedman A. M., Atcher R. and Hines J., 1977, "Retention of Plutonium and Americium by Rock", Science, 196, 1087-1089.
- (50) Bondiette E. A. and Reynolds S. A., 1977, "Field and Laboratory Observations on Plutonium Oxidation States", Proc. Workshop on Actinide-Sediment Interactions (AMES L. L., Ed.) Battelle Northwest Laboratory, BNWL-2117, 505-530.
- (51) Nishita H., Hamilton M. and Steen A. J., 1978, "Extractability of ^{239}Pu and ^{242}Cm from a Contaminated Soil as a Function of pH and Certain Soil Components: HNO_3 -NaOH System". Soil Sci. Soc. AM. J., 42, 51-56.
- (52) Nelson D. M. and Lovett M. B., 1978, "Oxidation States of Plutonium in the Irish Sea", Nature, 276, 599-601.
- (53) Rai D., Serne R. J., and Swanson J. L., 1980, "Solution Species of Plutonium in the Environment," J. Environ. Qual., Vol. 9., 417~420.
- (54) Dahlman R. C., Bondietti E. A., Eyman L. D., 1976, "Biological Pathways and Chemical Behavior of Plutonium Other Actinides in the Environment," In : ACS Symposium Series, No35. Actinides in the Environment (A. M. Friedman, ed).
- (55) Nelson, D. M., Karttunen, J. O., Orlandini, K. A., Larsen, R. P., 1981, "Influence of Dissolved Organic Carbon on the Sorption of Plutonium to Nature Sediments," Radiological and Environmental Research Division Annual Rep. ANL - 80 - 115, Part - III, Argonne National Laboratory. Argonne Illinois.

- (56) Wildung, R. E., Garland, T. R., 1980, "The Relationship of Microbial Processes to the Fate and Behavior of Transuranic Element in Soils, Plants and Animals," In : Transuranic Elements in the Environment, DOA/TIC 22800 (W. R. Hansen ed) U. S. Department of Energy, NTIS, Springfield, VA.
- (57) Sherman F., Friedman A. M., Cohen D., Hines J. J., Strichert G. R., 1977, "The Migration of Long-Lived Radioactive Processing wastes in Selected Rocks", Argonne National Laboratory, ANL-78-46.
- (58) Koide M., Griffin J. J. and Goldbery E. D., 1975, "Records of plutonium fallout in marine and terrestrial samples", J. Geophys. Res., 80, 4153-4162.
- (59) Aston S. R., Stanners D. A., 1981, "Plutonium transport to and deposition and immobility in Irish Sea intertidal sediments", Nature, Vol. 289, p.581-582.
- (60) Beasley T. M., Carpenter R. and Jennings C. D., 1982, "Plutonium, ^{241}Am and ^{137}Cs ratios, inventories and vertical profiles in Washington and Oregon continental shelf sediments", Geochim. Cosmochim. Acta 46, 1931-1946.
- (61) Scott M. R., Salter P. F. and Halverson J. E. 1983, "Transport and deposition of plutonium in the Ocean : evidence from Gulf of Mexico sediments" Earth Planet. Sci. Lett., 63, 202-222.
- (62) Livingston H. D., Bowen V. T., 1979, "Pu and ^{137}Cs in coastal sediments", Earth Planet. Sci. Lett., 43, p.29-45.

- (63) Bowen V. T., Noshkin V. T., Livingston H. D. and Volchok H. L., 1980,
 "Fallout radionuclides in the Pacific Ocean : Vertical and horizontal
 distributions, largely from GEOSSECS stations", Earth planet. Sci. Lett.,
 49, 411-434.
- (64) Santschi P. H., Li Y. H., Bell J. J., Trier R. M. and Kawatalak K., 1980,
 "Pu in coastal marine environments", Earth Planet. Sci. Lett., 51, 248-265.
- (65) Cochran J. K., 1985, "Particle mixing rates sediments of the eastern equa-
 torial Pacific : Evidence from ^{210}Pb , $^{239}^{240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs distributions at
 MANOP sites", Geochim. Cosmochim. Acta, Vol. 49, p.1195-1210.
- (66) Megumi K., 1978, "A problem in ^{210}Pb geochronologies of sediments" Nature,
 885-887.
- (67) Smith J. N. and Ellis K. 1981, "Transport mechanism for fallout ^{137}Cs to
 estuarine sediments", IAEA-SM-248/118, 119-130.
- (68) Nozaki Y., 1977, "Distribution of Natural Radionuclides in Sediments
 Influenced by Bioturbation", J. Geol. Soc. Jpn., 8. 699-706.
- (69) Crank J., 1975, Mathematics of Diffusion, Oxford University Press. 414p.

第4章 放射性廃棄物の陸地処分の安全評価手法の検討

4.1 概説

本研究⁽¹⁾では主に低レベル放射性廃棄物を浅層地中に処分した際に周辺公衆の受ける被曝線量を目下検討されている処分シナリオと処分施設サイト条件に沿って検討した。ここでは、検討に用いた安全評価モデルの概要とケーススタディとして実施した評価条件およびその評価結果について以下に述べる。

原子力発電所より発生する濃縮廃液・廃樹脂の固化体を主体とする低レベル放射性廃棄物は、1990年を目途に下北地区に集中貯蔵が開始される見通しである。その後、貯蔵から陸地処分へ移行するためには先づ安全評価手法を開発し、その手法によって評価された結果の妥当性が実証試験等を通じて確認される必要がある。

陸地処分の安全評価を実施するには、サイト条件等のパラメータ調査に続いて

- ① 処分施設および処分場からの核種漏洩量の推定
- ② 漏洩核種の環境内での移行解析
- ③ 食物連鎖を通じての核種摂取量の推定
- ④ 摂取核種量に基づく被曝線量の推定

の手順が一般に考えられる（図4-1参照）。これらの手順の中で食物連鎖以降の評価手順

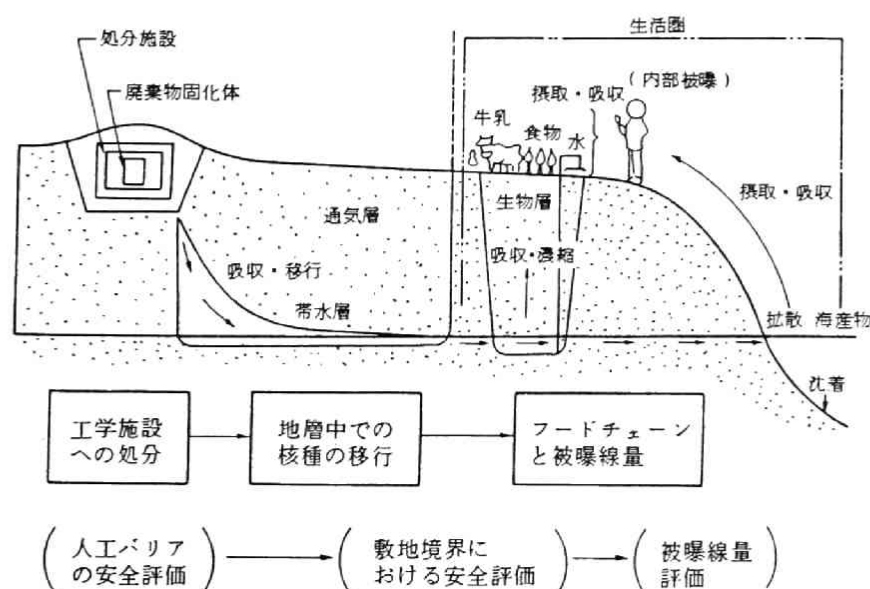


図4-1 安全評価フロー（断面図）

については、すでに試験的海洋処分のための安全評価⁽²⁾に用いられた手法ならびに 原子炉施設設置のための安全審査指針⁽³⁾等に述べられているものと同じであり 評価手法として上記①②に比べ研究が進んだ段階にあると考えられる。ここでは、まだ十分に研究が進んでいないが、陸地処分の安全評価では大きく結果に影響を与えられとされる漏出核種の環境内移行モデルの構成を中心に検討する。

核種の環境内移行モデルについては、米国では、NRC⁽⁴⁾やEPA⁽⁵⁾を中心に多くのモデルが検討され提案されている。しかしながら、米国で開発されたモデルをそのまま我国に適用することは、気候、地質、生活環境条件の大きな違いにより困難な面がある。そこで米国流の考え方の中で我国に適用できるものはそれを採用し、我国固有の条件に合わせて新たに構成する必要のあるモデルはそれを新たに造り加えることにより、考慮する必要のある全ての核種移行経路を網羅した線量評価が可能となるように評価モデルの構成を図る必要がある。本研究は、①我国固有の気候・地質・生活環境条件に合わせた評価モデルの作成と、我国の陸地処分場として考えられる一般的なサイト条件を仮定したケース・スタディの実施を通じて、評価モデルの安全性を検討することにより陸地処分の安全性を論議する際の目安を得ること、②実際に環境に放出された放射性核種による人体影響を評価するケース・スタディとして1945年長崎原爆の際に大量のフォールアウト・プルトニウムが降下蓄積している長崎市西山でプルトニウムから一般公衆の受ける影響について、本評価手法の適用を計り評価検討すること、を目的とする。

4.2 内部被曝線量評価モデル

4.2.1 被曝線量評価の基本的考え方

我国の低レベル廃棄物陸地処分の場合、サイト条件（地下水位が高い、雨量が多い、地層が複雑、人間生活環境までの距離が短い等）あるいは社会的条件（生活様式等）の違いから、米国等で実施されてきた処分⁽⁶⁾⁽⁷⁾よりも一層安全性を重視し人工バリアー効果を十分に期待した処分が実施されるであろうと考えられる。それと同時に安全評価自体にもきめ細かな考察が要求されることになる。このような観点から、表4-1⁽⁸⁻⁵²⁾に整理した主に米国において開発されてきた評価コードを眺めるとその多くは、特定の選定された経路についてのみ評価が可能なモデルが多く、想定されるすべての経路を網羅したものは少

表 4-1 環境経路と被曝線量評価計算コードの要約

計算コード	輸送媒体										著者および文献番号		
	大気				表面水				地下水				
	エア-ボーン		陸生		水生		陸生		飲料水	食物摂取			
	外部	呼吸	外部	食物摂取	外部	水産物摂取	飲料水	外部				食物摂取	
ACRA ACRA. II AIRDOS AIRDOS. II	A ^(a) A R R	A A R R									STALLMAN AND KAM 1973 ORNL 1974 MOORE 1975 MOORE 1977	8 9 10 11	
AIRDOS. EPA AIREM ANDOSE AQUAMAN ARRRG	R R R	R R R	R R	R R			R R A/R	R R A/R			MOORE et al. 1979 MARTIN 1974 IIZUMA AND SHIRATSU 1979 SHAEFFER AND ETNIER 1979 NAPIER et al. 1980a	12 13 14 15 16	
BEACH. III CEDRIC* CLOUD COLDSE		A/R A A		A/R	R R	R A/R	A/R		A/R	A/R	A/R	HIRAYAMA et al. 1977 CLARKE 1972 BONZON AND RIVARD 1970 GERDINGH 1979	17 18 19 20
COMRADEX (I. II. III) CRAC2 CRACOME CRRIS	A A A R	A A A R		A A R								WILLIS et al. 1970: SPECHT et al. 1975 OTTER AND CANNERS 1975 RITCHIE et al. 1982 PIEPHO 1981 BAES AND MILLER 1981	21 22 23 24 25
DACRIN* EERIE EGAD		A/R A										HOUSTON 1976 MACDONALD 1971 COOPER 1972 : MARTIN 1974	26 27 28
FOOD GASPAR INREM INREM. II*	R	R A/R A/R	A/R R	A/R R A/R			A/R A/R	A/R A/R	A/R A/R	A/R A/R	A/R A/R	NAPIER et al. 1980b ECKFRMAN et al. 1980 KILLOUGH 1975 KILLOUGH et al. 1978	29 30 31 32
ISOLA II KRONIC LADTAP MILDOS	R R R				R R R	R R R	R R R	R R R				HILBSCHMANN AND NAGEL 1975 STRENGE AND WATSON 1973 SIMPSON AND MCGILL 1980 STRENGE AND BANDER 1981	33 34 35 36
MO142 MUNDO PABLM PATHL PLUTO	A A R	A A R		A/R A/R	R R R	R R R	R R R	A/R A/R	R R R	R R R	R R R	ECKERT 1964 WELLER et al. 1967 NAPIER et al. 1980b HELTON et al. 1981 HIRAYAMA et al. 1977	37 38 29 39 40
PRESTO PUDEO* RADOS RVRDOS		R A/R		R		R R R	R R R	R R R	R R R	R R R	R R R	LITTLE et al. 1981 HOUSTON AND HEID 1975 COOPER 1968 MARTIN et al. 1976	41 42 43 44
SUBDOS TERMOD TIRION.4 VADOSCA WEERTIE	A A R A/R			A/R R		R R R	R R R	R R R				STRENGE 1975 BOOTH AND KAYE 1971 FRYER 1978 BRAMATI et al. 1973 CLARKE 1973	45 46 47 48 49
WRAITH WRED YIELDS	A A	A A		A		A A	A A	A A	A A	A A	A A	SCHERPELZ et al. 1980 COOPER 1969 CHESTER 1974	50 51 52

(a) A : 事故放出, R : 平常時放出

(b) * の計算コードは, 内部被曝線量のみを評価

ない。さらに我国においては主要経路の一つとなると考えられている海・淡水産物経路に対する配慮が十分になされているとは言い難い。

このような背景を踏まえ安全評価の基本的考え方を整理すると以下ようになる。

『経験に基づく決定経路中心の評価でなく、現時点で考えられる全被曝経路を網羅できるよう評価モデルの構成を図り各経路について概略評価を行い重要な経路を客観的に選定する。次に選定された重要な経路について詳細な解析を実施するという２段階評価を行う必要がある。』

4.2.2 被曝線量評価モデル構成のための前提条件

低レベル放射性廃棄物の陸地処分施設に雨水の浸入等により施設から放射性物質が環境中へ漏出する場合を想定して、漏出した放射性物質によって人が受ける線量を評価するモデルを構成する。モデルの構成に際して、以下の各項目を前提条件として設定した。

- ① 雨水の浸入等により環境へ漏出する放射性核種による個人線量を評価の対象にする。
- ② 汎用性のある評価モデルとなるようあらかじめ決定経路を想定せず、どのような条件でどの経路が決定経路になるかを評価できるような評価モデルを構成する。
- ③ 本評価モデルでは、人の外部被曝については評価の対象外とする。

その他、モデル構成に必要な個々の仮定は、その都度明記することにする。

上述の前提条件を考慮して、図4-2のような放射性核種の移行経路を想定した。放射性廃棄物陸地処分施設から水によって地中環境へ運び出された放射性核種は図4-2の経路により、最終的には6経路から人体に摂取されるものと考えた。

以下図4-2の各経路に沿った環境媒体毎に放射性核種の移行量、濃度等を定式化し、評価モデルを構成することにする。

4.2.3 被曝線量評価モデルの構成

各環境媒体中での核種移行モデルの構築に関しては、主に次の文献「発電用軽水型原子炉施設周辺の線量目標値に対する評価指針について⁽³⁾」、「NRC, Models for Evaluating the Transport of Radionuclides in Groundwater⁽⁵³⁾」、「U. S. NRC, Regulatory Guide 1.109⁽⁵⁴⁾」、「放射性固体廃棄物の陸地保管施設の安全評価－被曝線量評価モ

デルの構成」⁽⁵⁵⁾、「使用済み核燃料輸送の安全評価に関する調査報告」⁽⁵⁶⁾に紹介されているモデルを参考に検討した。表4-2に本研究で構築した評価モデルと参考にした評価モデルの違いについて整理した。以下に本評価モデルに含まれる個々の環境媒体モデルについて記述する。

(1) 地中の核種移行

1) 処分場からの漏出

① 漏出の形態

処分場から核種が漏出する形態としては、以下の2つの形態がある。

- a. 洪水等によって、処分場が破壊され、核種が瞬時に表面土壌に漏出する形態
- b. 通常雨水が処分場内に侵入し、核種が通気層中へ直接漏出する形態

② 漏出後の核種移行

上記2つの形態が同時に発生しないと仮定した場合、漏出後の核種は、概ね以下

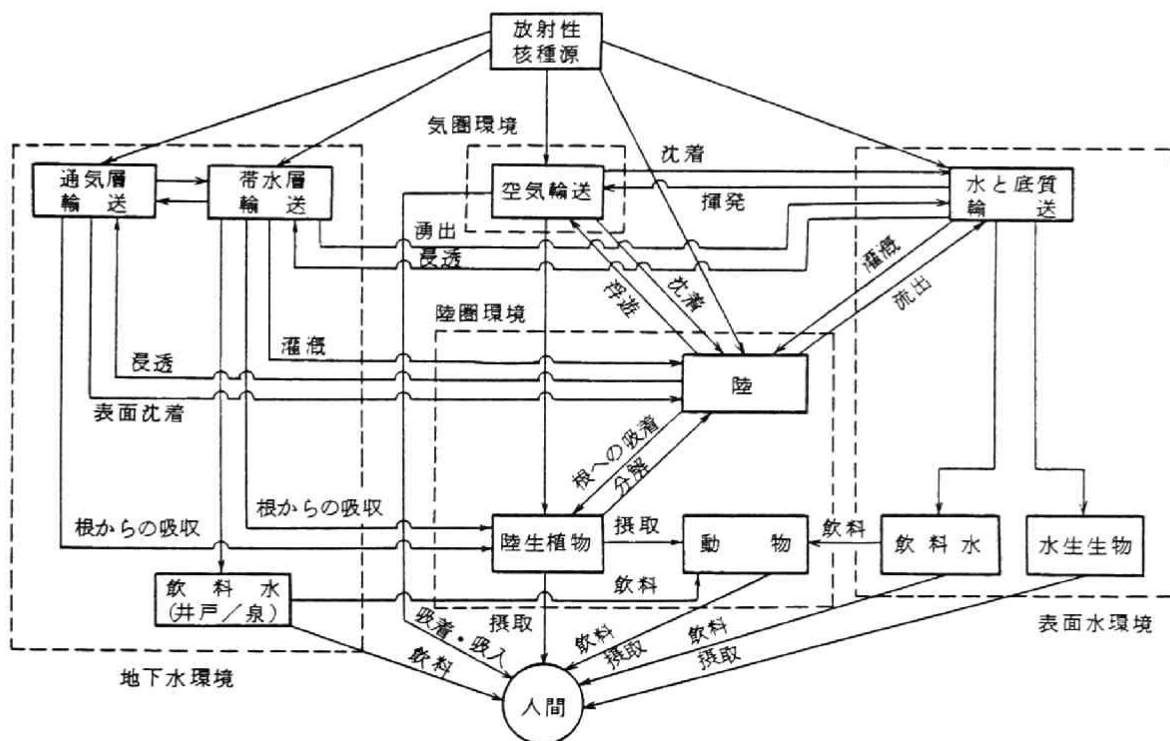


図4-2 想定した放射性核種の移行経路

表4-2 本研究で構築した評価モデルと参考にした評価モデルとの比較

モデル名 項目	本 研 究	陸地保管施設の 安全評価モデル ^{*1}	原子炉安全専門 審査会内規 ^{*2}	使用済燃料輸送 安全評価 ^{*3}	NRCモデル ^{*4}
放射性物質の放出 シナリオ	①雨水浸透等により定常的に固 化体より施設外への漏洩 ②洪水による施設破壊による瞬時 漏洩	保管施設の洪水、火災による ウォーター・ボーンおよびエ アボーンによる環境への漏洩 (事故を対象とする)	原子炉施設からの気体廃棄物 および液体廃棄物の放出 (液体廃棄物の場合は海洋放出)	使用済燃料輸送キャスクの 海没後定常放出と瞬時放出	①洪水、火災、人災等による施 設からの放出 ②施設への水の浸入・浸出によ る平常放出
環境中での 移行経路	①通気層→地下水→井戸→人 ②通気層→地下水→農・畜産物 →人 ③通気層→地下水→淡水産物→ 人 ④通気層→地下水海産物→人 ⑤通気層→表面土壌→エアボ ーン→人	ウォーターボーン エアボーン ↓ 井戸→人 地下水・土壌 { 農・畜産物→人 表面水 { 淡水産物→人 海洋 { 海産物→人 エアボーン→空気→人	①大気→牧草→牛乳→人 ②大気→葉菜→人 ③海洋→海産物→人	海洋→海産物→人	地下水→人 表面水→土壌→農・畜産物→人 空気→土壌→農・畜産物→人
通気層モデル	降雨量より蒸発散量を差しひ きし有効降雨量を求め、通気 層内での地下水をピストン流 で近似し、一次元移流拡散方 程式の解析解で核種濃度を評 価	鉛直一次元定常流れを仮定、 通気層内での核種濃度は、吸 着による遅延効果は考慮する が分散効果は考慮せず、通気 層での核種移動速度を評価す る	通気層モデル含まず	通気層モデル含まず	通気層内での水の流れは有限差 分による数値計算によって求め 、得られた流速を基に、核種の遅 延効果のみを考慮して核種の移 動速度を評価する
帯水層モデル	水平方向一次元移流拡散方程 式の解析解によって、地下水 中核種濃度を評価 (通気層から帯水層への核種の 流入が線源として起こる場合 は上記解析解の重ね合わせ)	流れは、水平方向一次元で 分散は二次元で生じると考え た擬二次元移流拡散方程式の 瞬間線源に対する近似解で 地下水中核種濃度評価	帯水層モデル含まず	帯水層モデル含まず	水平方向一次元流を仮定した 移流拡散方程式の点線源に対す る解析解によって核種濃度評価
海洋モデル	点・線源に対する、三次元の 移流拡散方程式の解析解によ って海洋中核種濃度評価(海 流速度、渦動拡散係数は、評 価海域での実測データをイン プット)	海洋中へは、核種は瞬間的に 一点より移行するものと仮定、 海洋中核種濃度は、海水交換 率と評価海域の海水体積によ って希釈されるものとする	海洋モデルは含まず	点源に対する三次元移流拡散 方程式の解析解によって海洋 中核種濃度評価	海洋モデルは含まず
被曝線量 評価モデル	ICRP pub.2 による個人被 曝 (ただし、内部被曝のみを評価)	ICRP pub.2 による個人 被曝 (内部、外部被曝評価)	①よう素による内部被曝では 同位体希釈効果を評価 ②外部被曝では、海浜作業、 海上作業、魚網操作、遊泳 時を評価 ③評価モデルでは、ICRP pub.2 に準ず	ICRP pub.2 による個人 および集団線量を評価 (内部・外部被曝評価)	線量変換係数による個人およ び集団の内部・外部被曝の評 価(海産物摂取経路は含まず)

注) *1 ; 放射性固体廃棄物の陸地保管施設の安全評価-被曝線量評価モデルの構成⁽⁵³⁾

*2 ; 発電用軽水型原子炉施設周辺の線量目標値に対する評価指針について⁽³⁾

*3 ; 使用済み核燃料輸送の安全評価に関する調査報告⁽⁵⁶⁾

*4 ; U.S.NRC, Regulatory Guide 1.109⁽⁵⁷⁾; NRC, Models for Evaluating the Transport of Radionuclides
in Groundwater⁽⁵⁸⁾; NUREG-0782⁽⁵⁹⁾とNUREG/CR-1963⁽⁶⁰⁾

の経路で環境中を移行する。

a. 雨水によって核種が直接通気層中へ漏出する場合

この場合、核種は通気層へ漏出し、図4-2に示した経路を移行してゆく。

b. 洪水等によって、核種が表面土壌に瞬時に漏出した場合

この場合、表面土壌に漏出した核種は瞬時に吸着平衡に達し、一部が表面土壌中に残留し、未吸着分は洪水と共に、表面水中へ瞬時に移行する。

表面水へ移行した核種は、図4-2に示した経路を移行してゆく。

一方、表面土壌に残留した核種は、その後の雨水による通気層への浸透もしくは表面水の流入または大気拡散により、毎年その一部が環境中を移行してゆく。

2) 表面土壌中核種吸着量

処分場から表面土壌への核種漏出は、洪水等により処分場が破壊した場合にのみ発生すると考える。洪水等により核種が瞬時に表面土壌に運ばれ、瞬時に吸着平衡に達し、未吸着分は瞬時に表面水中に移行すると仮定した場合、表面土壌に残留する核種量 $M_{ts} [C_i / y]$ および表面水中へ移行する核種量 $t_s M_{re} [C_i / y]$ はそれぞれ式(4-1)および式(4-2)で与えられる。

$$M_{ts} = M \cdot \frac{(1-f_{ts}) \cdot k_{tss} \cdot \rho_{ts} \cdot Q_{ts}}{T_o \cdot Q_{fL} + (1-f_{ts}) \cdot k_{tss} \cdot \rho_{ts} \cdot Q_{ts}} \quad (4-1)$$

$$t_s M_{fL} = M \cdot \frac{Q_{fL} \cdot T_o}{T_o \cdot Q_{fL} + (1-f_{ts}) \cdot k_{tss} \cdot \rho_{ts} \cdot Q_{ts}} \quad (4-2)$$

ここで、 M : 処分場からの漏出核種量 $[C_i / y]$

f_{ts} : 表面土壌空隙率 $[\text{——}]$

k_{tss} : 飽和条件下での表面土壌の分配係数 $[m^3 / kg]$

Q_{ts} : 吸着に関与する表面土壌の体積 $[m^3]$

T_o : 有効時間 $[y]$

Q_{fL} : 洪水の水量 $[m^3 / y]$

ρ_{ts} : 表面土壌の真密度 $[kg / m^3]$

また、表面土壌中の核種濃度 $q_{ts} [C_i / kg]$ は、式(4-3)で与えられる。

$$q_{ts} = M_{ts} \cdot T_o / \{ (1-f_{ts}) \cdot \rho_{ts} \cdot Q_{ts} \} \quad \dots\dots\dots (4-3)$$

3) 表面土壌からの移行量

表面土壌に吸着した核種は、その後の雨水による通気層への浸透もしくは表面水への流入または大気拡散により、その一部が毎年環境中へ移行してゆく。

通気層への移行量を $t_s M_{as} [C_i / y]$ 、表面水への流入量を $t_s M_{fw} [C_i / y]$ 、大気拡散量を $t_s M_{ar} [C_i / y]$ およびその年の表面土壌残留量を

とした場合、マスバランスは式(4-4)で示される。

$$M_{ts} = t_s M_{as} + t_s M_{fw} + t_s M_{ar} + M_{ts}^{\circ} \quad \dots\dots\dots (4-4)$$

表面水へ移行する雨水の割合を $t_s K_{fw} [———]$ とした場合、 $t_s M_{as} [C_i / y]$ は式(4-5)、式(4-6)で与えられる。

$$t_s M_{as} = (1 - t_s K_{fw}) \cdot \frac{T_o \cdot \bar{R} \cdot A_{ts}}{T_o \cdot R \cdot A_{ts} + (1 - f_{ts}) \cdot k_{ts} \cdot \rho_{ts} \cdot Q_{ts}} \cdot M_{ts} \quad (4-5)$$

$$t_s M_{fw} = t_s K_{fw} \cdot \frac{T_o \cdot \bar{R} \cdot A_{ts}}{T_o \cdot R \cdot A_{ts} + (1 - f_{ts}) \cdot k_{ts} \cdot \rho_{ts} \cdot Q_{ts}} \cdot M_{ts} \quad (4-6)$$

ここで、 \bar{R} : 有効降雨量 $[m / y]$

A_{ts} : 表面土壌の面積 $[m^2]$

K_{ts} : 不飽和条件下での表面土壌の分配係数 $[m^3 / kg]$

なお、大気拡散量 $t_s M_{ar} [C_i / y]$ は式(4-30)で与えられる。

4) 通気層中の核種移行

通気層中を核種が移行するのは、処分場から核種が直接漏出する場合と、表面土壌に吸着した核種が雨水により浸透する場合とがある。

① 処分場から直接漏出する場合

通気層中の核種移行に関する一連の物性値等が、通気層中で一定、地下水は通気層中をピストン流として移動しかつ核種が深さ方向(Z方向)のみに移行し、瞬時に吸着平衡に達すると仮定した場合、通気層中の収支式は、式(4-7)～式(4-10)で示される。

$$\frac{\partial C_a}{\partial t} = \frac{D_z}{R_a} \cdot \frac{\partial^2 C_a}{\partial Z^2} - \frac{U_z}{R_a} \cdot \frac{\partial C_a}{\partial Z} - \lambda C_a \quad (4-7)$$

$$R_a = 1 + \frac{1-f_a}{f_a \cdot S} \cdot k_a \cdot \rho_a \quad (4-8)$$

$$D_z = D_m \cdot |U_z| + D_d \quad (4-9)$$

$$U_z = \bar{R} / (f_a \cdot S) \quad (4-10)$$

ここで、 C_a : 通気層液相核種濃度 [C_i / m^3]

D_z : 通気層深さ方向拡散係数 [m^2 / y]

R_a : 通気層遅延定数 [—]

U_z : 通気層浸透水流速 [m / y]

λ : 崩壊定数 [y^{-1}]

f_a : 通気層空隙率 [—]

S : 通気層水分飽和度 [—]

k_a : 通気層分配係数 [m^3 / kg]

ρ_a : 通気層真密度 [kg / m^3]

D_m : 標準拡散係数 [m]

D_d : 分子拡散係数

なお、通気層液相初期濃度 C_{ao} [C_i / m^3] は、式(4-11)で与えられる。

$$C_{ao} = M / [A_{ps} \cdot R \cdot \{ f_a \cdot S + (1-f_a) \cdot \rho_a \cdot k_a \}] \dots\dots\dots (4-11)$$

ここで、 A_{ps} : 処分場面積 [m^2]

② 表面土壌に吸着した核種が雨水により浸透する場合

この場合も式(4-7)～式(4-10)が適用できる。但し、式(4-11)の代わりに式(4-12)を適用する。

$$C_{ao} = tsMas / [A_{ps} \cdot R \cdot \{ f_a S + (1-f_a) \cdot \rho_a \cdot k_a \}] \quad (4-12)$$

③ 帯水層への核種移行量

通気層底面 ($Z = Z_H$) での通気層濃度を $C_a (Z_H, t)$ とする場合、通気層から帯水層への核種移行量 $asMgw [Ci / y]$ は式(4-13)で与えられる。

$$asMgw = \bar{R} \cdot Aps \cdot C_a (Z_H, t) \quad (4-13)$$

④ 通気層核種濃度の解析解 (1次元の場合)

a. 定濃度連続漏出

式(4-7) を式(4-14)～式(4-16)に示す条件のもとに解いた場合、解析解は式(4-17)～式(4-19)で与えられる。

$$\begin{cases} Z > 0, \quad t = 0 \text{ で } C_a = 0 & (4-14) \end{cases}$$

$$\begin{cases} Z = 0, \quad t > 0 \text{ で } C_a = C_{a0} & (4-15) \end{cases}$$

$$\begin{cases} Z = \infty, \quad t > 0 \text{ で } C_a = 0 & (4-16) \end{cases}$$

$$\begin{aligned} C_a &= \frac{C_{a0}}{2} \cdot F(Z, t) \\ &= \frac{C_{a0}}{2} \cdot \left[\exp \left\{ \frac{U'_z + \sqrt{4D'_z \lambda + (U'_z)^2}}{2D'_z} \cdot Z \right\} \cdot \operatorname{erfc} \left\{ \frac{Z + \sqrt{4D'_z \lambda + (U'_z)^2} \cdot t}{2\sqrt{D'_z t}} \right\} \right. \\ &\quad \left. + \exp \left\{ \frac{U'_z - \sqrt{4D'_z \lambda + (U'_z)^2}}{2D'_z} \cdot Z \right\} \cdot \operatorname{erfc} \left\{ \frac{Z - \sqrt{4D'_z \lambda + (U'_z)^2} \cdot t}{2\sqrt{D'_z t}} \right\} \right] \end{aligned} \quad (4-17)$$

ここで、

$$\begin{cases} U'_z = U_z / Ra & (4-18) \end{cases}$$

$$\begin{cases} D'_z = D_z / Ra & (4-19) \end{cases}$$

b. 定濃度定期間漏出

式(4-7) を式(4-20)～式(4-23)に示す条件のもとに解いた場合、解析解は式(4-24)で与えられる。

$$\begin{cases} Z > 0, \quad t = 0 \text{ で } C_a = 0 & (4-20) \end{cases}$$

$$\begin{cases} Z = 0, \quad 0 < t < T_0 \text{ で } C_a = C_{a0} & (4-21) \end{cases}$$

$$\begin{cases} Z = 0, \quad t > T_0 \text{ で } C_a = 0 & (4-22) \end{cases}$$

$$\begin{cases} Z = 0, \quad t > 0 \text{ で } C_a = 0 & (4-23) \end{cases}$$

$$\left. \begin{aligned} C_a &= \frac{C_{a0}}{2} \cdot F(Z, t) & (0 < t \leq T_0) \\ C_a &= \frac{C_{a0}}{2} \{ F(z, t) - F(z, t - T_0) \} & (t > T_0) \end{aligned} \right\} \quad (4-24)$$

5) 帯水層中の核種移行

- ① 帯水層中の核種移行に関する物性値等が帯水層中で一定、かつ地下水の流れが1方向（x方向）に一定流速で流れると仮定した場合、帯水層中の核種移行は式(4-25)～式(4-28)で示される。

$$\begin{aligned} \frac{\partial C_g}{\partial t} &= \frac{D_x}{R_g} \cdot \frac{\partial^2 C_g}{\partial x^2} + \frac{D_y}{R_g} \cdot \frac{\partial^2 C_g}{\partial y^2} + \frac{D_z}{R_g} \cdot \frac{\partial^2 C_g}{\partial z^2} \\ &\quad - \frac{U_x}{R_g} \cdot \frac{\partial C_g}{\partial x} - \lambda C_g \end{aligned} \quad (4-25)$$

$$R_g = 1 + \frac{1 - f_g}{f_g} \cdot k_g \cdot \rho_g \quad (4-26)$$

$$D_x = D_m \cdot |U_x| + D_d \quad (4-27)$$

$$D_y = D_z = D_d \quad (4-28)$$

ここで、 C_g : 帯水層液相濃度 $[C_i / m^3]$

D_x : 帯水層流れ方向拡散係数 $[m^2 / y]$

D_y : 帯水層水平方向拡散係数 $[m^2 / y]$

D_z : 帯水層深さ方向拡散係数 $[m^2 / y]$

R_g : 帯水層遅延定数 $[\text{ — }]$

U_x : 地下水流速 $[m / y]$

f_g : 帯水層空隙率 $[\text{ — }]$

ρ_g : 帯水層真密度 $[kg / m^3]$

k_g : 帯水層分配係数 $[\text{m}^3/\text{kg}]$

Z_g : 帯水層厚さ $[\text{m}]$

② 帯水層中核種濃度

帯水層中の核種の挙動を一次元で考え、かつ通気層から帯水層へ流入移行する核種量 asM_{gw} が、帯水層厚さ Z_g に均一に分布すると仮定した場合、解析解⁽⁵³⁾は式(4-29)

$$C_g = \int_0^t \frac{1}{Z_g \cdot f_g \cdot R_g} \cdot \frac{asM_{gw}(\tau) e^{-\lambda(t-\tau)}}{\sqrt{4\pi(D_x/R_g) \cdot (t-\tau)}} \cdot e^{-\frac{\{x - \frac{U_x}{R_g}(t-\tau)\}^2}{4 \cdot \frac{D_x}{R_g} \cdot (t-\tau)}} \cdot d\tau \quad (4-29)$$

で与えられる。また通気層から帯水層への核種の流入が、帯水層の流れに沿って(位置 $-X_0$ から $+X_0$ の間)発生するとした場合の解析解は、式(4-29)を流れ方向に重ね合わせるにより得られる。

$$\begin{aligned} C_g &= \int_0^t \int_{-X_0}^{X_0} \frac{asM_{gw}(\tau)}{Z_g \cdot f_g \cdot R_g} \cdot \frac{e^{-\lambda(t-\tau)}}{\sqrt{4\pi D'_x(t-\tau)}} \cdot e^{-\frac{\{x-x_u-u'_x(t-\tau)\}^2}{4D'_x(t-\tau)}} \cdot dx_u \cdot d\tau \\ &= \int_0^t \frac{1asM_{gw}(\tau)}{2Z_g \cdot f_g \cdot R_g} \cdot e^{-\lambda(t-\tau)} \cdot [\text{erf}\left\{\frac{x+x_0-u'_x(t-\tau)}{\sqrt{4D'_x(t-\tau)}}\right\} - \text{erf}\left\{\frac{x-x_0-u'_x(t-\tau)}{\sqrt{4D'_x(t-\tau)}}\right\}] \cdot d\tau \end{aligned} \quad (4-30)$$

(2) 浮遊および大気拡散

1) 浮遊量⁽⁵⁴⁾⁽⁵⁵⁾

表面土壌に吸着した核種が、風によって浮遊する場合の浮遊量 $tsMar [C_i/y]$ は、式(4-31)で与えられる。

$$tsMar = A_{ts} \cdot H_e \cdot Re \cdot (1-f_{ts}) \cdot \rho_{ts} \cdot d_{ts} \cdot q_{ts} / T_o \quad (4-31)$$

ここで、H : 浮遊のおよぶ高さ〔m〕

Re : 浮遊係数〔m⁻¹〕

dts : 吸着／浮遊に関与する表面土壌厚さ〔m〕

2) 大気拡散^(*)

大気中の濃度Car〔Ci/m³〕は、汚染表面土壌を点源と仮定し、風がx方向のみに吹くと仮定した場合、式(4-32)で与えられる*。

$$C_{ar} = \frac{tsMar}{\pi \cdot \sigma_y \cdot \sigma_z \cdot w_x} \cdot \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right) \quad (4-32)$$

ここで、 σ_y : 水平方向拡散幅〔m〕

σ_z : 鉛直方向拡散幅〔m〕

w_x : 風速〔m/y〕

(3) 食物連鎖による核種移行

1) 表面水への核種移行

表面水への核種移行は、3つの経路を経て行われる。第1は表面土壌からの洪水、雨水による流入で、第2は、大気からの沈降、第3は帯水層からの地下水の湧出である。

① 洪水、雨水による流入

表面土壌からの洪水、雨水による流入形態には、洪水による瞬時流入とその後の雨水による流入とがある。前者は式(4-2)で与えられ、後者は式(4-6)で与えられる。

② 大気からの沈降

表面水的位置を(x, y)とした場合、大気からの沈降量 arMfw〔Ci/y〕は、式(4-33)で与えられる。

$$arMfw = A_{fw} \cdot \frac{V_g \cdot C_{ar}(x, y) \cdot \{1 - \exp(-\lambda \cdot T_0)\}}{\lambda \cdot T_0} \quad (4-33)$$

* 大気拡散に関するブルーム型モデル式(次式)において、Z=0、H=0として式(4-32)を得る。

$$C_{ar} = \frac{tsMar}{2\pi\sigma_x\sigma_yw_x} \cdot e^{-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}} \cdot \left(e^{-\frac{(Z-H)^2}{2\sigma_z^2}} + e^{-\frac{(Z+H)^2}{2\sigma_z^2}} \right)$$

ここで、 A_{fw} : 表面水の表面積 [m^2]

V_g : 核種沈降速度 [m/y]

③ 地下水の湧出

地下水の湧出水量を $g_w Q_{fw}$ [$m^3/y \cdot m^2$] とした場合、地下水から表面水への湧出核種量 $g_w M_{fw}$ [C_i/y] は式(4-34)で与えられる。

$$g_w M_{fw} = A_{fw} \cdot g_w Q_{fw} \cdot C_g \quad (4-34)$$

④ 表面水への核種移行量

表面水への核種移行量 M_{fw} [C_i/y] は式(4-35)で与えられる。

$$M_{fw} = t_s M_{fl} + t_s M_{fw} + a_r M_{fw} + g_w M_{fw} \quad (4-35)$$

⑤ 表面水中核種濃度

表面水中核種濃度 C_{fw} [C_i/m^3] は式(4-36)で与えられる。

$$C_{fw} = \frac{M_{fw}}{Q_{fw} + A_{fw} \cdot g_w Q_{fw} + t_s Q_{fw} + Q_{fl}} \quad (4-36)$$

ここで、 Q_{fw} : 核種を含まない水の表面水流入量 [m^3/y]

$t_s Q_{fw}$: 雨水の表面水への流入量 [m^3/y]

また、表面水が、池、沼等で、滞留による核種濃度の減衰を考慮する場合の基礎式および表面水濃度は、それぞれ 式(4-37)、式(4-38)で与えられる。(なお、式(4-37)および 式(4-38)では、核種の流入形態として、地下水からの湧出のみを考慮した。)

$$V_o \frac{d}{dt} C_{fw} = v_o C_g - (v_o + v) C_{fw} - \lambda V_o C_{fw} \quad (4-37)$$

$$C_{fw} = \frac{v_o}{V_o} \cdot e^{-\left(\frac{v+v_o}{V_o} + \lambda\right)t} \cdot \int_0^t C_g \cdot e^{-\left(\frac{v+v_o}{V_o} + \lambda\right)\tau} d\tau \quad (4-38)$$

ここで、 V_o : 池、沼等の体積 [m^3]

v_o : 地下水の湧出量 [m^3/y]

v : 池、沼等からの流出水量 [m^3/y]

2) 農業用水への核種移行⁽⁵⁴⁾⁽⁵⁵⁾

農業用水への核種移行は、表面水の取水による経路と、地下水の取水による経路がある。

① 表面水の取水

表面水の取水量を $f_w Q_{aw}$ [m^3/y]とした場合、核種移行量 $f_w M_{aw}$ [Ci/y]は、式(4-39)で与えられる。

$$f_w M_{aw} = C_{fw} \cdot f_w Q_{aw} \quad (4-39)$$

② 地下水の取水

地下水の取水量を $g_w Q_{aw}$ [m^3/y]とした場合、核種移行量 $g_w M_{aw}$ [Ci/y]は、式(4-40)で与えられる。

$$g_w M_{aw} = C_{gw} \cdot g_w Q_{aw} \quad (4-40)$$

③ 農業用水中核種濃度

核種を含まない水の農業用水としての使用量を Q_{aw} [m^3/y]した場合、農業用水の核種濃度 C_{aw} [Ci/m^3]は、式(4-41)で与えられる。

$$C_{aw} = \frac{f_w M_{aw} + g_w M_{aw}}{Q_{aw} + f_w Q_{aw} + g_w Q_{aw}} \quad (4-41)$$

3) 飲料水への核種移行⁽⁵⁴⁾⁽⁵⁵⁾

飲料水への核種移行は、表面水の取水による経路と、地下水の取水による経路がある。

① 表面水の取水

表面水の取水量を $f_w Q_{dw}$ [m^3/y]、水処理による核種濃度低減率を F_{dw} [—]とした場合、核種移行量 $f_w M_{dw}$ [Ci/y]は、式(4-42)で与えられる。

$$f_w M_{dw} = F_{dw} \cdot C_{fw} \cdot f_w Q_{dw} \quad (4-42)$$

② 地下水の取水

地下水の取水量を $g_w Q_{dw}$ [m^3/y] とした場合, $g_w M_{dw}$ [C_i/y] は, 式(4-43)で与えられる。

$$g_w M_{dw} = C_{gw} \cdot g_w Q_{dw} \quad (4-43)$$

③ 飲料水中核種濃度

核種を含まない水の飲料水としての使用量を Q_{dw} [m^3/y] とした場合, 飲料水中の核種濃度 C_{dw} [C_i/m^3] は, 式(4-44)で与えられる。

$$C_{dw} = \frac{f_w M_{dw} + g_w M_{dw}}{Q_{dw} + f_w Q_{dw} + g_w Q_{dw}} \quad (4-44)$$

4) 耕作土壌への核種移行⁽⁵⁴⁾⁽⁵⁵⁾

耕作土壌への核種移行は, 大気からの沈降による経路と, 農業用水の灌漑による経路がある。

① 大気からの沈降

耕作土壌の位置を (x, y) とした場合, 大気からの沈降による核種移行量 arM_{cs} [C_i/y] は, 式(4-45)で与えられる。

$$arM_{cs} = A_{cs} \cdot \frac{V_g \cdot C_{ar}(x, y) \cdot \{1 - \exp(-\lambda \cdot T_0)\}}{\lambda \cdot T_0} \cdot (1 - K_2) \quad (4-45)$$

ここで, A_{cs} : 耕作土壌面積 [m^2]

K_2 : 耕作物への核種沈降割合 [—]

② 農業用水の灌漑

農業用水の灌漑を awQ_{cs} [$m^3/y \cdot m^2$] とした場合, 農業用水からの核種移行量 awM_{cs} [C_i/y] は, 式(4-46)で与えられる。

$$awM_{cs} = A_{cs} \cdot C_{aw} \cdot awQ_{cs} \quad (4-46)$$

③ 耕作土壤中核種濃度

農業用水と耕作土壌との間の吸着平衡を仮定した場合、耕作土壌への核種移行量 $M_{cs} [Ci/y]$ は、式(4-47)で与えられる。

$$M_{cs} = (arM_{cs} + awM_{cs}) \times \frac{(1-f_{cs}) \cdot \rho_{cs} \cdot k_{cs} \cdot Q_{cs}}{T_0 \cdot A_{cs} \cdot awQ_{cs} + (1-f_{cs}) \cdot \rho_{cs} \cdot k_{cs} \cdot Q_{cs}} \quad (4-47)$$

ここで、 f_{cs} ：耕作土壌空隙率 [—]

ρ_{cs} ：耕作土壌真密度 [kg/m³]

k_{cs} ：耕作土壌分配係数 [m³/kg]

Q_{cs} ：吸着に關与する耕作土壌分体積 [m³]

従って、耕作土壌中核種濃度 $q_{cs} [Ci/kg]$ は、式(4-48)で与えられる。

$$q_{cs} = M_{cs} \cdot T_0 / \{ (1-f_{cs}) \cdot \rho_{cs} \cdot Q_{cs} \} \quad (4-48)$$

4) 牧草地への核種移行⁽⁵⁴⁾⁽⁵⁵⁾

牧草地への核種移行へは、大気からの沈降による経路と農業用水の散布による経路がある。

① 大気からの沈降

牧草地の位置を (x, y) とした場合、大気からの沈降による核種移行量 $arM_{ME} [Ci/y]$ は、式(4-49)で与えられる。

$$arM_{ME} = A_{ME} \cdot \frac{V_g \cdot C_{ar}(x, y) \cdot \{1 - \exp(-\lambda \cdot T_0)\}}{\lambda \cdot T_0} \quad (4-49)$$

ここで、 A_{ME} ：牧草地面積 [m²]

② 農業用水の散水

農業用水の散水を $awQ_{ME} [m^3/y \cdot m^2]$ とした場合、農業用水から牧草地への核種移行量 $awM_{ME} [Ci/y]$ は、式(4-50)で与えられる。

$$awM_{ME} = A_{ME} \cdot C_{aw} \cdot awQ_{ME} \quad (4-50)$$

③ 牧草地中核種濃度

散布された農業用水中の核種が、すべて牧草地に移行すると仮定した場合、牧草地への核種移行量 $M_{ME} [C_i / y]$ は、式(4-51)で与えられる。

$$M_{ME} = a_r M_{ME} + a_w M_{ME} \quad (4-51)$$

従って、牧草地中の核種濃度 $q_{ME} [C_i / kg]$ は、式(4-52)で与えられる。

$$q_{ME} = M_{ME} \cdot T_o / \{ (1 - f_{ME}) \cdot \rho_{ME} \cdot Q_{ME} \} \quad (4-52)$$

ここで、 f_{ME} ：牧草地空隙率 [—]

ρ_{ME} ：牧草地真密度 $[kg / m^3]$

Q_{ME} ：吸着に關与する牧草地体積 $[m^3]$

6) 牧草への核種移行⁽⁵⁴⁾⁽⁵⁵⁾

牧草への核種移行は、牧草地中に含まれる核種の経根濃縮による。

牧草中の核種濃度 $S_{MA} [C_i / kg]$ は、式(4-53)で与えられる。

$$S_{MA} = C_{FMA} \cdot q_{ME} \quad (4-53)$$

ここで、 C_{FMA} ：牧草の核種移行係数 [—]

7) 海水への核種移行

海水への核種移行は、帯水層からの流入および表面水からの流入の2経路がある。

① 帯水層からの流入

帯水層からの流入 $g_w M_{sw} [C_i / y]$ は式(4-54)で与えられる。

$$g_w M_{sw} = B_{gw} \cdot U_x \cdot C_g \quad (4-54)$$

ここで、 B_{gw} ：地下水の海への流入面積 $[m^2]$

② 表面水からの流入

表面水からの流入量 $f_w M_{sw} [C_i / y]$ は、式(4-55)で与えられる。

$$f_w M_{sw} = f_w Q_{sw} \cdot C_{fw} \quad (4-55)$$

ここで, $r_w Q_{sw}$: [表面水の海への流入面積 [m²/y]

③ 海水中核種濃度⁽⁵⁶⁾

海水中核種濃度 C_{sw} [Ci/m³] は, 下記の条件のもとで, 式(4-56)~式(4-59)で与えられる。

条 件 a. 海岸線は直線である。

b. 海岸線に直角な方向(沖合方向)を X 方向, 海岸線に平行な方向を Y 方向, 水深方向を Z 方向とする。

c. 水深は H で一様とする。

d. $Y = \pm\infty$ および $X = +\infty$ で $C_{sw} = 0$ である。

e. $X = 0$ (海岸線) および $Z = 0$ (水面), $Z = H$ (海底) で核種の濃度勾配はない。

f. 海流は, 海岸線に平行で, その流速は X に比例する。

g. 地下水または表面水の流入位置を (X_0, Y_0, Z_0) とする。

$$C_{sw} = \int_0^t (M_{sw}) \cdot e^{-\lambda(t-\tau)} \cdot C_1(t, X, \tau) \cdot C_2(t, Y, \tau) \cdot C_3(t, Z, \tau) \cdot d\tau \quad (4-56)$$

$$C_1(t, X, \tau) = \frac{1}{\sqrt{4\pi \cdot k_X(t-\tau)}} \cdot \left\{ e^{-\frac{(X-X_0)^2}{4k_X(t-\tau)}} + e^{-\frac{(X+X_0)^2}{4k_X(t-\tau)}} \right\} \quad (4-57)$$

$$C_2(t, Y, \tau) =$$

$$\frac{1}{\sqrt{4\pi \cdot \{k_Y + V^2 \cdot k_X(t-\tau)^2/12\}(t-\tau)}} \cdot e^{-\frac{\{Y-Y_0 - V \cdot X \cdot (t-\tau)/2\}^2}{4k_Y(t-\tau) + V^2 k_X(t-\tau)^3/3}} \quad (4-58)$$

$$C_3(t, Z, \tau) = \frac{1}{\sqrt{4\pi \cdot k_Z(t-\tau)}} \left[e^{-\frac{(Z-Z_0)^2}{4k_Z(t-\tau)}} + e^{-\frac{(Z+Z_0)^2}{4k_Z(t-\tau)}} + \sum_{n=1}^{\infty} \left\{ e^{-\frac{(Z-Z_0-2nH)^2}{4k_Z(t-\tau)}} + e^{-\frac{(Z+Z_0-2nH)^2}{4k_Z(t-\tau)}} + e^{-\frac{(Z-Z_0+2nH)^2}{4k_Z(t-\tau)}} + e^{-\frac{(Z+Z_0+2nH)^2}{4k_Z(t-\tau)}} \right\} \right] \quad (4-59)$$

ここで, M_{sw} : 海への流入核種量 ($g_w M_{sw}$ または $f_w M_{sw}$) [C_i / y]

k_x : 海水中拡散係数 (沖合方向) [m^2 / y]

k_y : " (海岸線方向) [m^2 / y]

k_z : " (深さ方向) [m^2 / y]

V : 海流速度 [m / y]

また, 表面水または地下水が特定の流域幅 (Y_1 から Y_2 まで) をもって海に流入する場合, 式(4-58)の $C_2(t, Y, \tau)$ は式(4-60)で与えられる。

$$\begin{aligned}
 C_2(t, Y, \tau) &= \frac{1}{Y_2 - Y_1} \cdot \frac{1}{\sqrt{4\pi\{k_Y + V^2 \cdot k_X(t-\tau)^2/12\}(t-\tau)}} \\
 &\quad \times \int_{Y_1}^{Y_2} e^{-\frac{\{Y - Y_0 - V \cdot X(t-\tau)/2\}^2}{4k_Y(t-\tau) + V^2 \cdot k_X(t-\tau)^3/3}} dY_0 \\
 &= \frac{1}{2(Y_2 - Y_1)} \cdot \left\{ \operatorname{erf}\left(\frac{Y - Y_1 - V \cdot X(t-\tau)/2}{\sqrt{4(t-\tau)\{k_Y + V^2 \cdot k_X(t-\tau)^2/12\}}}\right) \right. \\
 &\quad \left. - \operatorname{erf}\left(\frac{Y - Y_2 - V \cdot X(t-\tau)/2}{\sqrt{4(t-\tau)\{k_Y + V^2 \cdot k_X(t-\tau)^2/12\}}}\right) \right\} \quad (4-60)
 \end{aligned}$$

8) 耕作物への核種移行⁽⁵⁴⁾⁽⁵⁵⁾

耕作物への核種移行は, 大気からの沈降による経路と, 耕作土壌からの経根濃縮による経路がある。

① 大気からの沈降

耕作土壌の位置を (x, y) とした場合, 耕作物への核種移行量 $arM_{\ell p}$ [C_i / y] は式(4-61)で与えられる。

$$arM_{\ell p} = A_{cs} \cdot \frac{V_g \cdot Car(x, y) \cdot \{1 - \exp(-\lambda \cdot T_0)\}}{\lambda \cdot T_0} \cdot k_2 \quad (4-61)$$

耕作物の生育密度を Y_{ep} [kg / m^2] とした場合, 沈降による耕作物核種濃度 $arSep$ [C_i / kg] は, 式(4-62)で与えられる。

$$arSep = arM_{ep} \cdot T_0 / (A_{cs} \cdot Y_{ep}) \quad (4-62)$$

② 経根濃縮

経根濃縮による耕作物核種濃度 $csSep [Ci/kg]$ は、式(4-63)で与えられる。

$$csSep = CFep \cdot qcs \quad (4-63)$$

ここで核種 $CFep$: 耕作物の核種移行係数 [—]

③ 合計

①および②から、耕作物中の核種濃度 $Sep [Ci/kg]$ は、式(4-64)で与えられる。

$$Sep = arSep + csSep \quad (4-64)$$

9) 畜産物の核種移行⁽⁵⁴⁾⁽⁵⁵⁾

① 動物への核種移行

動物への核種移行には、呼吸による経路、表面水の飲料による経路および牧草の摂取による経路がある。

動物への核種移行量 $Mea [Ci/y \cdot \text{頭}]$ は、式(4-65)で与えられる。

$$Mea = Car \cdot arIea + Cfw \cdot fwIea + SMA \cdot maIea \quad (4-65)$$

ここで、 $arIea$: 動物の呼吸量 [$m^3/y \cdot \text{頭}$]

$fwIea$: 動物の表面水取水量 [$m^3/y \cdot \text{頭}$]

$maIea$: 動物の牧草摂取量 [$kg/y \cdot \text{頭}$]

② 畜産物への核種移行

畜産物への核種移行量 $Sea [Ci/kg]$ は、式(4-66)で与えられる。

$$Sea = TFea \cdot Mea \quad (4-66)$$

ここで、 $TFea$: 動物から畜産物への核種移行率 [$y \cdot \text{頭}/kg$]

10) 淡水産物および海産物⁽³⁾

淡水産物の核種濃度 S_{ff} [C_i/kg] および海産物の核種濃度 S_{sf} [C_i/kg] は、式(4-67)、式(4-68)で与えられる。

$$S_{ff} = C_{Fff} \cdot C_{fw} \quad (4-67)$$

$$S_{sf} = C_{Fsf} \cdot C_{sw} \quad (4-68)$$

ここで、 C_{Fff} ：淡水産物の核種濃縮係数 [m^3/kg]

C_{Fsf} ：海産物の核種濃縮係数 [m^3/kg]

(4) 核種摂取量および内部被曝線量⁽³⁾

1) 核種摂取量

以上の記述から、人の放射性核種摂取量は、摂取経路ごとに、以下の各項で与えられる。

① 呼吸による摂取量 J_{ar} [$C_i/y \cdot \text{人}$]

$$J_{ar} = C_{ar} \cdot I_{ar} \quad (4-69)$$

ここで、 I_{ar} ：人の呼吸による空気摂取量 [$\text{m}^3/y \cdot \text{人}$]

② 飲料水による摂取量 J_{dw} [$C_i/y \cdot \text{人}$]

$$J_{dw} = C_{dw} \cdot I_{dw} \quad (4-70)$$

ここで、 I_{dw} ：人の飲料水摂取量 [$\text{m}^3/y \cdot \text{人}$]

③ 淡水産物による摂取量 J_{ff} [$C_i/y \cdot \text{人}$]

$$J_{ff} = \sum_p F_{ff,p} \cdot S_{ff,p} \cdot I_{ff,p} \quad (4-71)$$

ここで、 $F_{ff,p}$ ：淡水産物Pに関する核種の希釈率 [—]

$I_{ff,p}$ ：淡水産物Pの摂取量 [$\text{kg}/y \cdot \text{人}$]

④ 海産物による摂取量 J_{sf} [$C_i/y \cdot \text{人}$]

$$J_{sf} = \sum_p F_{sf,p} \cdot S_{sf,p} \cdot I_{sf,p} \quad (4-72)$$

ここで, $F_{sf,p}$: 海産物 P に関する核種の希釈率 [—]

$I_{sf,p}$: 海産物 P の摂取量 [kg/y・人]

⑤ 耕作物による摂取量 J_{ep} [Ci/y・人]

$$J_{ep} = \sum_p F_{ep,p} \cdot S_{ep,p} \cdot I_{ep,p} \quad (4-73)$$

ここで, $F_{ep,p}$: 耕作物 P に関する核種の希釈率 [—]

$I_{ep,p}$: 耕作物 P の摂取量 [kg/y・人]

⑥ 畜産物による摂取量 J_{ea} [Ci/y・人]

$$J_{ea} = \sum_p F_{ea,p} \cdot S_{ea,p} \cdot I_{ea,p} \quad (4-74)$$

ここで, $F_{ea,p}$: 畜産物 P に関する核種の希釈率 [—]

$I_{ea,p}$: 畜産物 P の摂取量 [kg/y・人]

⑦ 合計 J [Ci/y・人]

$$\begin{aligned} J &= J_{ar} + J_{dw} + J_{ff} + J_{sf} + J_{ep} + J_{ea} \\ &= \sum_{food} J_{food} \end{aligned} \quad (4-75)$$

2) 内部被曝線量

臓器 m の線量預託を DF_m [rem/Ci] とした場合, 人の内部被曝線量 D [rem/y・人] は式(4-76)で与えられる。

$$D = \sum_m \sum_{food} DF_m J_{food} \quad (4-76)$$

なお, 各臓器の線量預託 DF_m [rem/C] は式(4-77)で与えられる。

$$DF_m = k \cdot \frac{\epsilon \cdot F_w}{N \cdot \lambda_e} \cdot \{ 1 - \exp(-\lambda_e \cdot \tau_o) \} \quad (4-77)$$

ここで, k : 換算係数 [rem・kg/(Ci・M・V・y)]

ϵ : 核種の臓器内有効エネルギー [M・V]

F_w : 核種の臓器 m 内への移行率 [—]

N : 臓器 m の質量 [kg]

λ_e : 核種の実効崩壊定数 [y^{-1}]

τ_o : 臓器 m の被曝時間 [y]

4.3 モデルの検討

4.3.1 パラメータ感度解析

本評価モデルは、数多くのパラメータを含んでいるので入力するパラメータの選択のいかんによっては、結果に大きく影響を与えるものとそうでないものがある。そこでより一般性をもつようにパラメータ感度解析によってパラメータの重要度を検討する。

ここでは、McCuen⁽⁵⁷⁾、Freshley⁽⁵⁸⁾が水理モデル、あるいは森沢⁽⁵⁹⁾が陸地処分場立地選定モデルの感度解析に用いた評価関数のTaylor展開を基礎とした手法によりパラメータ感度解析を行う。すなわち、その手法とは、独立変数を x_1, x_2, \dots, x_n とし評価関数 F を

$$F = f(x_1, x_2, \dots, x_n)$$

で定義すると、1つの変数 x_i の微小変化 Δx_i に対する関数 F の変化後の値は、Taylor展開を用いて

$$f(x_i + \Delta x_i) = F + \left(\frac{\partial F}{\partial x_i} \right) \cdot \Delta x_i + \left(\frac{1}{2!} \right) \left(\frac{\partial^2 F}{\partial x_i^2} \right) \cdot (\Delta x_i)^2 + \dots$$

と表わせる。今 Δx_i の高次項を無視すると変数 x_i に関する感度関数 S_i は次式で一般に定義される。

$$S_i = \frac{\partial F}{\partial x_i} = \frac{f(x_1, x_2, \dots, x_i + \Delta x_i, \dots, x_n) - f(x_1, \dots, x_i, \dots, x_n)}{\Delta x_i}$$

これは、任意に定めた評価位置での評価関数 F の各変数の変化に対する傾きを表しており、森沢はこれを変動係数と呼びその値の大小により各独立変数 x_i の評価関数 F に及ぼす影響の大小を判定している。またMcCuenは、一般に $\partial F / \partial x_i$ を次式

$$S_i = \frac{F_2 - F_1}{x_{i2} - x_{i1}}$$

で近似することを提案している。さらに変数間の比較を容易にするために、相対感度 S_{ri} を次式で定義し F と x_i の変動効果を規格している。

$$S_{ri} = \left(\frac{F_2 - F_1}{x_{i2} - x_{i1}} \right) \cdot \left(\frac{x_{i1}}{F_1} \right) = \left(\frac{F_2 - F_1}{F_1} \right) \cdot \left(\frac{x_{i2} - x_{i1}}{x_{i1}} \right)$$

ここに、1, 2: x_i が変動する前と後の系の状態を表わす。

本研究では、評価関数 $F(x_1, x_2, \dots, x_n)$ としてすべての被曝計算の基礎となる地下水摂取経路にのみ注目すると、評価式としては一般的には、次式

$$F(X_i) = \frac{C_{ao}}{Z_g \cdot f_g \cdot R_g} \int_0^t \int_{-x_0}^{x_0} \exp\left(\frac{U'_z \cdot Z}{2D'_z}\right) \left(\frac{Z}{\sqrt{4\pi D'_z \cdot \tau^3}}\right) \cdot \exp\left(-\frac{(U'_z{}^2 + 4D'_z \lambda) \tau^2 + Z^2}{4D'_z \cdot \tau}\right) \\ \cdot \frac{e^{-\lambda(t-\tau)}}{\sqrt{4\pi D'_x(t-\tau)}} \cdot e^{-\frac{[X-X_u]-U'_x(t-\tau)]^2}{4D'_x(t-\tau)}} dx_u \cdot d\tau$$

を考えることが必要であるが、ここでは計算を簡単にするために一次元拡散方程式の定常解

$$F(X_i) = C_o \exp\left\{\frac{U - \sqrt{U^2 + 4D\lambda}}{2D} \cdot Z\right\}$$

ここに、

$$U = \frac{V}{R} = H \left/ \left(1 + \frac{1-f}{f \cdot S} \cdot \rho \cdot K_d\right) \right. \times S \times f$$

$$D = \frac{D_o}{R} = D_o \left/ \left(1 + \frac{1-f}{f \cdot S} \cdot \rho \cdot K_d\right) \right.$$

を採用し検討する。変動係数 $\frac{\partial F}{\partial X_i}$ を表4-3に、また評価に用いる基準点の各パラメータ値を表4-4に、さらに基準点での絶対感度の計算結果を表4-5に整理して示す。

この結果から被曝線量評価に大きく寄与するパラメータとしては、核種分配係数、地下水流速あるいは降雨量が上げられる。この結果は森沢⁽⁵⁹⁾の与えた結果とも一致している。

以上の検討を基に、空隙率、有効降雨量、水分飽和度、通気層分配係数、帯水層分配係数、通気層厚さ、地下水流速を、基準値（現行データ表4-4参照）を中心に現実と考えられる変動範囲で変化させた場合に、処分場中心より500mの地点での地下水経路に起因する⁹⁰Srによる被曝線量を計算し、その結果を表4-6に整理した。その結果、被曝線量におおきく影響を与える因子は、通気層分配係数 \geq 帯水層分配係数 $>$ 有効降雨量 \geq 地下水流速等であり、逆に空隙率、水分飽和度等は少々の変動があつたとしても被曝線量評価結果には、さほど大きく作用しないことが明らかとなった。一方この結果は、絶対感度を基にした評価とも一致している。

パラメータ感度解析の結果、被曝線量モデルの中で線量に最も大きく寄与するモデル部

表 4-3 パラメータ感度解析のための変動係数 $\left(\frac{\partial F}{\partial X_i}\right)$ 一覧

評価関数 :

$$F(x_i) = C_0 \exp \left\{ \frac{U - \sqrt{U^2 + 4 D \lambda}}{2 D} \cdot Z \right\}$$

$$\left(\text{ただし, } U = \frac{U_0}{R}, \quad D = \frac{D_0}{R} = \frac{D_1 U_0 + D_2}{R}, \quad U_0 = \frac{H}{f \cdot S}, \quad R = 1 + \frac{1-f}{f \cdot S} \cdot \rho \cdot k_d \right)$$

変動係数

$$1. \quad \frac{\partial F}{\partial U} = \frac{Z}{2 D} \cdot \left(1 + \frac{U_0}{\sqrt{U_0^2 + 4 D \lambda R^2}} \right) \exp \left\{ \frac{U_0 - \sqrt{U_0^2 + 4 D \lambda R^2}}{2 D R} \cdot Z \right\}$$

$$2. \quad \frac{\partial F}{\partial k_d} = - \frac{(1-f) \cdot \rho \cdot \lambda \cdot Z}{f \cdot S \sqrt{U_0^2 + 4 \lambda \cdot D \cdot R^2}} \cdot \exp \left\{ \frac{U_0 - \sqrt{4 D \lambda R^2}}{2 D R} \cdot Z \right\}$$

$$3. \quad \frac{\partial F}{\partial H} = \frac{Z [2 \lambda D_1 D - D_2 \{ U_0 - \sqrt{U_0^2 + 4 \lambda D} \}]}{2 \cdot f \cdot S \cdot (D_1 U_0 + D_2)^2 \cdot \sqrt{U_0^2 + 4 \lambda D}} \cdot \exp \left\{ \frac{U_0 - \sqrt{U_0^2 + 4 \lambda D R^2}}{2 D R} \cdot Z \right\}$$

$$4. \quad \frac{\partial F}{\partial S} = \left(- \frac{Z \cdot f \cdot \lambda}{2 (D_1 H + f \cdot S \cdot D_2)^2} \times [H - \sqrt{H^2 + 4 \lambda (D_1 H + f \cdot S \cdot D_2) \{ f \cdot S + (1-f) \cdot \rho \cdot k_d \}}] \right. \\ \left. - \frac{Z \cdot f \cdot \lambda}{(D_1 H + f \cdot S \cdot D_2)} \times \sqrt{H^2 + 4 \lambda (D_1 H + f \cdot S \cdot D_2) \{ f \cdot S + (1-f) \cdot \rho \cdot k_d \}} \right. \\ \left. \times [D_2 \{ f \cdot S + (1-f) \cdot \rho \cdot k_d \} + (D_1 H + f \cdot S \cdot D_2)] \right. \\ \left. \times \exp \left\{ \frac{U_0 - \sqrt{U_0^2 + 4 D \lambda R^2}}{2 D R} \cdot Z \right\} \right)$$

$$5. \quad \frac{\partial F}{\partial f} = \left(- \frac{Z \cdot S \cdot D_2}{(D_1 H + f \cdot S \cdot D_2)^2} \cdot [H - \sqrt{H^2 + 4 \lambda (D_1 H + f \cdot S \cdot D_2) \cdot \{ f \cdot S + (1-f) \cdot \rho \cdot k_d \}}] \right. \\ \left. - \frac{Z \cdot \lambda}{(D_1 H + f \cdot S \cdot D_2)} \left\{ (D_1 H + 2 f \cdot S \cdot D_2) (S \cdot \rho \cdot k_d) + S \cdot \rho \cdot k_d \cdot D_2 \right\} \right) \\ \times \exp \left\{ \frac{U_0 - \sqrt{U_0^2 + 4 D \lambda R^2}}{2 D R} \cdot Z \right\}$$

$$6. \quad \frac{\partial F}{\partial \rho} = - \left(\frac{1-f}{f \cdot S} \cdot k_d \right) \frac{\lambda \cdot Z}{\sqrt{U_0^2 + 4 \lambda \cdot D \cdot R^2}} \cdot \exp \left\{ \frac{U_0 - \sqrt{U_0^2 + 4 D \lambda R^2}}{2 D R} \cdot Z \right\}$$

表 4-4 モデルの検討に用いた環境および食物連鎖に関するパラメータ

サイトおよび環境条件	処分施設面積		500 × 500 = 250,000 (m ²)			
	有効降雨量		1,000 (mm/yr)			
	通気層	空隙率	0.4	帯水層	空隙率	0.4
		水分飽和度	0.8		地下水流速	3 (m/day)
		土壌密度	2.5 (g/cm ³)		土壌密度	2.5 (g/cm ³)
		分配係数	$\begin{cases} {}^{90}\text{Sr} : 5 \text{ or } 50 \\ {}^{90}\text{Co} : 10 \text{ or } 100 \text{ (ml/g)} \\ {}^{137}\text{Cs} : 100 \end{cases}$		分配係数	$\begin{cases} {}^{90}\text{Sr} : 5 \\ {}^{90}\text{Co} : 10 \text{ (ml/g)} \\ {}^{137}\text{Cs} : 100 \end{cases}$
		地層厚さ	3 (m)		地層厚さ	5 (m)
	標準拡散係数		0.73 (cm)			
	海洋	流速 (沖合 10 km)	8.6 × 10 ⁴ (m/day)			
		拡散係数 (沖合方向)	10 ⁵ (cm ² /sec)			
拡散係数 (流れ方向)		5 × 10 ⁵ (")				
拡散係数 (深さ方向)		10 ² (")				
食物連鎖	農産物への核種移行係数		海産物への核種濃縮係数		淡水産物への核種濃縮係数	
	1.0 (⁹⁰ Co, ⁹⁰ Sr, ¹³⁷ Cs)		⁹⁰ Co : 100		⁹⁰ Co : 20	
			⁹⁰ Sr : 0.5 (ml/g)		⁹⁰ Sr : 5 (ml/g)	
			¹³⁷ Cs : 30		¹³⁷ Cs : 400	
摂取量	海産物	94.9 (kg/yr・人)	農産物	158.5 (kg/yr・人)		
	淡水産物	10.0 (")	畜産物	241.2 (")		
	飲料水	730 (ℓ/yr・人)				

表 4-5 絶対感度計算結果とパラメータの影響度の大きさ

絶対感度	$\frac{\partial F}{\partial U}$	$\frac{\partial F}{\partial k_d}$	$\frac{\partial F}{\partial H}$	$\frac{\partial F}{\partial S}$	$\frac{\partial F}{\partial f}$	$\frac{\partial F}{\partial \rho}$
厳密計算値	2.52	-62.1	5.66	-1.92×10^{-2}	0.485	-1.83×10^{-4}
影響度	大	大	大	小	小	小

表 4-6 感 度 解 析 結 果

(単位: mrem/yr)

パラメータ値	基 準 値	感度解析 I	感度解析 II	影響度
空 隙 率	40 年 5.68 (0.4)	60 年 6.19 (0.2)	20~30年 4.90 (0.7)	小
有 効 降 雨 量 (m/yr)	40 年 5.68 (1.0)	70 年 1.44 (0.5)	30 年 15.2 (2.0)	大
水 分 飽 和 度	40 年 5.68 (0.8)	40 年 5.78 (0.3)	40 年 5.72 (0.6)	小
通気層分配係数	40 年 5.68 (5.0)	230 年 2.19×10^{-2} (50)	570 年 4.3×10^{-1} (150)	大
帯水層分配係数	40 年 5.68 (5.0)	90 年 0.554 (50)	180 年 2.05×10^{-1} (150)	大
地 下 水 流 速 (m/day)	40 年 5.68 (3.0)	60 年 10.7 (1.0)	40 年 2.00 (10.0)	大

(注) 欄内の上段左はピーク時(年)右は計算値, 下段中央()内はパラメータ値

分は、通気層中での核種移動モデルである。従って通気層中での核種移動モデルの精度を上げると共に入力パラメータの信頼性を高めることが被曝線量評価全体の精度の向上につながると思われる。

4.3.2 放出形態と線量評価

放射性核種と処分場への放出形態の違いが被曝線量評価へ及ぼす影響を把握する目的で以下の3通り

- ① 単位放射能量*(1Ci)を瞬時放出(瞬間放出ケース)
- ② 単位放射能量(1Ci/y)を連続放出(定量連続放出ケース)
- ③ 単位放射能量(1Ci/y)を一定期間(30年間)連続放出(定期連続放出ケース)

の各ケースについて放出形態以外の計算条件を一致させて被曝線量を処分場の境界および

* 実際の漏洩量は何らかの方法で評価された場合には、あらかじめ単位量(1Ci)に対し計算しておくことにより、簡単に結果を推定できると同時に、瞬間放出と連続放出の放出形態の違いを評価し易くするためにここでは放出量を単位量(1Ci)とした。

境界より1,000mの地点で計算した。線量評価の対象とした核種は、比較的地中を速く移動し半減期の長い ^{90}Sr と 半減期が短く天然バリアーの持つ大きな遅延効果が期待できる ^{60}Co である。

前節の感度解析の結果より線量評価に最も大きく影響を及ぼす土壌の分配係数（特に通気層部）については、計算時間を短くし定量連続放出ケースの場合に定常に達する時間を早めるためにきわめて控え目な値（ ^{90}Sr に対し5ml/g, ^{60}Co に対し10ml/g）を採用した。線量計算に用いたサイト条件および各入力パラメータの値を表4-3に示す。

放出形態①②③の場合に境界および境界より1,000m地点での最大被曝線量値と出現時間を表4-7 および図4-3～4-4 に整理して示す。この結果を見ると、地質条件やその他の入力条件の選び方によって結果が変動するが最大線量は、 ^{90}Sr 、 ^{60}Co ともに定量連続放出②の場合が瞬間放出①の場合より1桁高い値となっている。また定期連続放出ケース③の場合は、被曝線量の経年変化は瞬間放出と定量連続放出の場合の中間的な傾向を見せているが、放出期間を30年とした場合は、最大線量はケース②の場合と一致している。

表 4-7 最大被曝線量に及ぼす放出形態の影響

核種	放出形態	被曝線量評価位置	最大被曝線量 (mrem/yr)	処分後経過年数 (yr)
^{90}Sr	① (瞬間放出)	敷地境界	2.5	30
		敷地境界より 1,000m	1.7	50
	② (定量連続放出)	敷地境界	22	50
		敷地境界より 1,000m	19	60
	③ (定期連続放出)	敷地境界	22	50
		敷地境界より 1,000m	19	60
^{60}Co	① (瞬間放出)	敷地境界	4.1×10^{-6}	45
		敷地境界より 1,000m	6.0×10^{-7}	50
	② (定量連続放出)	敷地境界	8.0×10^{-5}	67.5
		敷地境界より 1,000m	1.1×10^{-5}	70
	③ (定期連続放出)	敷地境界	8×10^{-5}	67.5
		敷地境界より 1,000m	8×10^{-7}	70

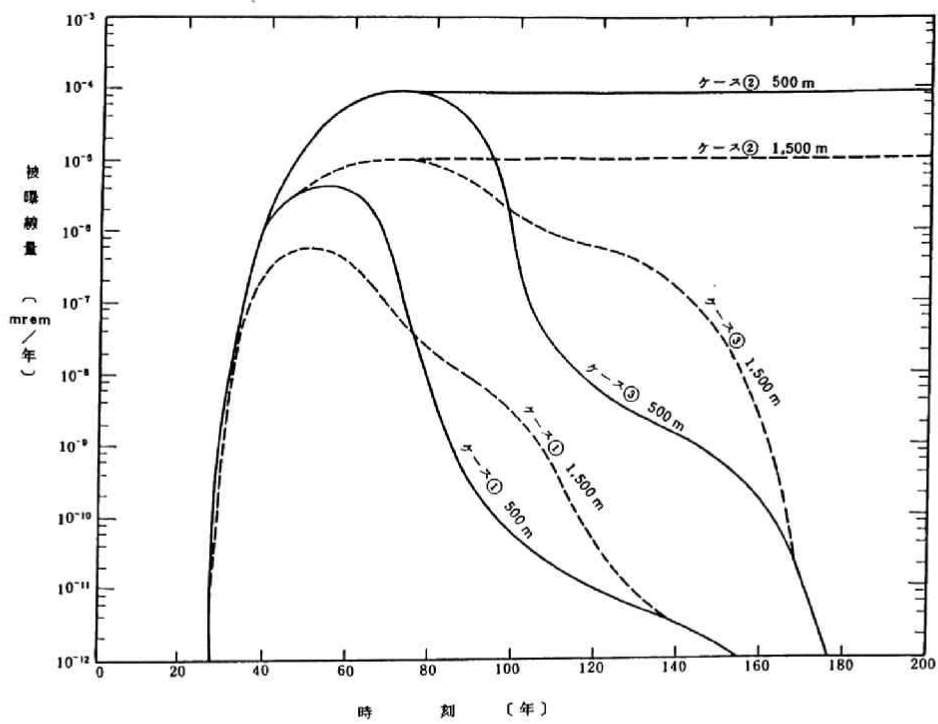


図 4-3 ^{60}Co 被曝線量の時間変化
〔通気層厚さ3m, 取水位置500m及び1,500m〕

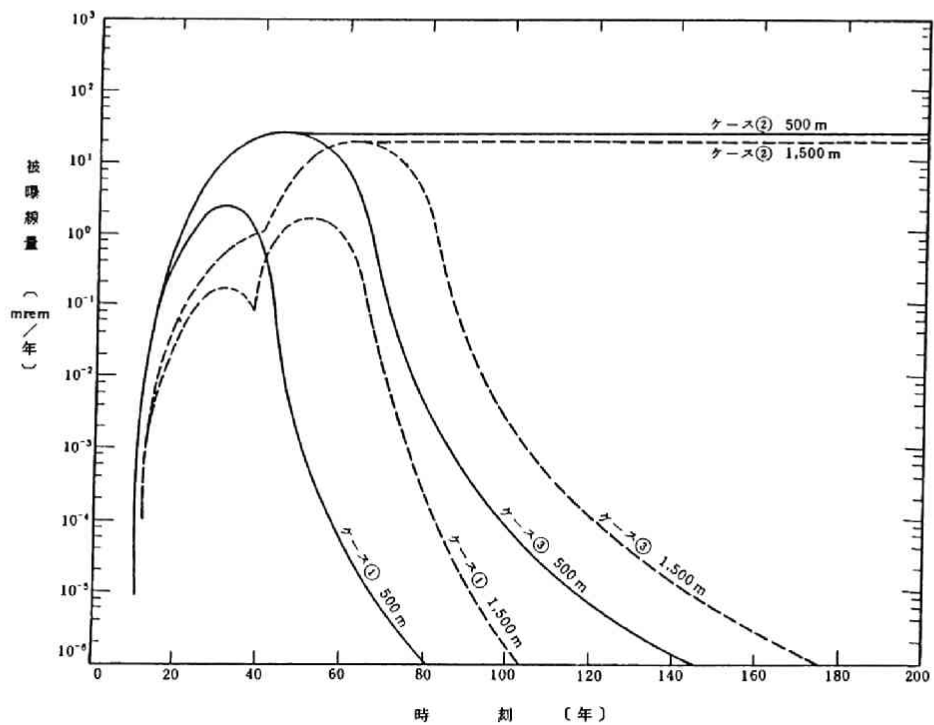


図 4-4 ^{90}Sr 被曝線量の時間変化
〔通気層厚さ3m, 取水位置500m及び1,500m〕

本結果から、事故のように瞬時に放出された場合にはケース①の結果を基に被曝線量を推定することが可能となる。また通常人工バリアーの性能劣化に伴い処分施設より低濃度で核種が長期にわたって漏出するような場合は、放出形態②あるいは③の結果を基に結果の予測をすることが可能である。

4.3.3 モデルの特徴

本研究において検討し、4.2.3で述べた評価モデルを基に作成した安全評価コードには、処分施設より地中へ漏出する核種量を評価する計算コードは含まれていないので、漏洩核種量は、任意に入力データとして与えることにより、施設より地中に漏出した核種の地中での移行および食物連鎖を通じての一般公衆個人の内部被曝線量を計算する。

本計算モデルの特徴を整理すると以下の通りである。

- ① 現時点で考えられうる全経路を網羅している。各経路ごとに独立したサブモデルにより構成されているので今後追加しなければならない経路が生じた場合には、それを付加することは容易である。また各経路ごとに被曝線量を計算することが可能であるのでサイト条件等に合わせて決定経路を選定することができる。
- ② 施設から漏出した核種は地中（通気層，帯水層）を移行するものと考え、地下水中での核種濃度はNRC等のモデル⁽⁵³⁾で採用されている式(4-17)(4-24)(4-29)(4-30)で表わされる移流拡散方程式の解析解を用いて求める。従って、非常に低濃度（ $C/C_0 = \sim 10^{-10}$ ）の範囲まで計算誤差を伴わず核種濃度の計算が可能であり、計算コストも安く数値計算に比べはるかに経済的である。
- ③ 地下水が河川，湖沼，海に入る際の評価では，
 - a. 河川水量，地下水流入量とも定量とし，混合は完全に行われるものとし，完全混合した水は海に流出する。
 - b. 湖沼の容量，地下水流入量とも定量とし，混合は完全に行われるものとし，完全混合した水は海に流出する。
 - c. 海への地下水の流入は海岸の一定の区間より定量の地下水が流入するものとする。
- ④ 海水中での核種濃度は，(式(4-56)～(4-60)で表わされる三次元海洋拡散方程式の解析解より求める。

- ⑤ 地中核種濃度は、土中水の核種濃度と吸着平衡が成立しているものと仮定し、土壌の分配係数を用いて評価する。
- ⑥ 食物中の核種濃度は、軽水路の安全審査指針等⁽³⁾に用いられている濃縮係数法により求める。
- ⑦ 内部被曝線量は、食物を通して摂取した核種の総量を基に⑥に示す指針⁽³⁾等を用いている線量換算法によって求める。

本評価モデルは、事前評価のように被曝線量を換算する場合にはきわめて有効と考えられるが、サイト条件が細かに変動しその変化を考慮して評価をしなければならないような場合には、不向きである。また評価コードの中に多くのサイト依存性の高いパラメータを含んでいることから、パラメータ値の選択が評価結果そのものの精度を左右するという特徴を持つ。それ故、パラメータの選定には、十分な調査を基に慎重に行うことが必要である。

4.4 陸地処分時被曝線量評価ケース・スタディ

前節までに被曝線量評価モデルの概要およびモデルの特徴について述べた。本章では、このモデルを用いて現実的なサイト条件の下で陸地処分が実施された場合に処分場周辺に生活する一般公衆個人の受ける内部被曝線量を評価する。

4.4.1 処分シナリオと処分施設からの核種漏出量予測⁽⁶⁰⁾

原子力発電所において発生した廃棄物の固化パッケージの処分は、以下のスケジュールに従うものとした。

- (1) 貯蔵・処分場への搬入は、1991年より開始する。
- (2) 西暦2001年より処分に移行する。したがって、2001年以降に搬入されるものは、直ちに処分されるものとする。
- (3) 貯蔵・処分場への搬入本数は、年間5万本とし、当面の総処分本数は、20年間に相当する100万本とする。

処分施設からの核種の漏出は、図4-5に示すようなコンクリートピットからの漏出概念に基づく次のプロセスによって生じるものと想定した。

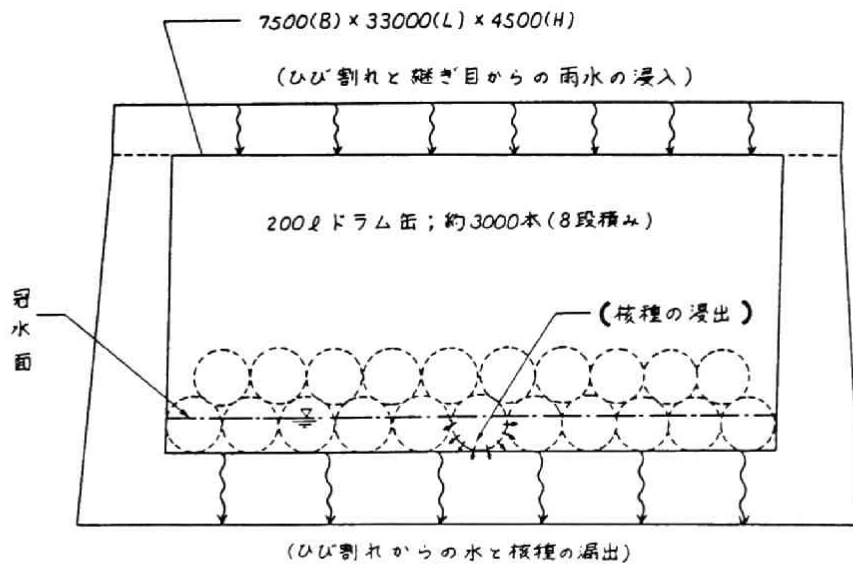


図4-5 コンクリートピットからの放射性核種漏出の概念図（文献(60)より引用）

(ピットのコンクリート壁に亀裂発生)



(浸入雨水がピット底部に湛水)



(冠水したパッケージからの核種の浸出)



(ピット底部の亀裂からの漏水にともなう核種の漏出)

具体的な内容を以下に述べる。

(1) パッケージの核種構成

パッケージに含まれる主要核種は ^{60}Co 、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs とし、その量は各機関の調査結果⁽⁶¹⁾を参考として表4-8のように設定した。

(2) 貯蔵期間中の仮定条件

処分に移行する以前の貯蔵期間中においては、施設内へ浸入した雨水は排除され、施設内が乾燥しているものとする。

(3) 雨水浸入によるピット底部の湛水深さ

処分施設への浸水量は 有効降雨量 (900mm/年を仮定) の1%とし、施設よりの漏水量は施設コンクリートにひび割れ (0.1mm幅のものが10m間隔) を仮定

表 4-8 固化パッケージ中の構成核種とその含有量 (文献(60)より引用)

パッケージの種類	核 種 の 種 類		
	^{60}Co	^{90}Sr	^{137}Cs
1990年以前BWRより発生するもの (セメント固化パッケージ)	2.6×10^{-3}	3.2×10^{-6}	3.2×10^{-4}
1991年以後BWRより発生するもの (プラスチック固化パッケージ)	4.0×10^{-3}	1.0×10^{-6}	1.0×10^{-4}
1984年以前PWRより発生するもの (セメント固化パッケージ)	6.0×10^{-3}	2.0×10^{-6}	4.0×10^{-4}
1985年以後PWRより発生するもの (アスファルト固化パッケージ)	2.1×10^{-2}	2.3×10^{-6}	4.5×10^{-4}

(単位: Ci/本)

して石川の式⁽⁶²⁾により求めた。浸水量と漏水量の収支関係から算定されるピット底部への湛水深さは約7cmであった。ただし、処分に移行する以前の貯蔵期間は、施設内の浸入水を排除するものとする。

(4) 浸出の対象となる固化パッケージ

固化パッケージは200ℓ標準ドラム缶(φ56cm×ℓ80cm):を用い、施設内に8段俵積みされとする。前(3)項で推定されたピット内湛水深さより、核種の浸出に寄与する固化パッケージは最下段のみとされるので、浸出の対象は全処分本数の1/8と仮定する。

(5) 浸出経路

セメント、アスファルトおよびプラスチックにより固化されたパッケージからの浸出は腐食による経路に限定しており、固化パッケージが冠水することによりドラム缶容器が腐食すると仮定する。

(6) 固化パッケージの破損率

腐食による固化パッケージの破損率については既往研究例が少ない。そこで、本研究においては日本原子力研究所の浸漬研究結果⁽⁶³⁾を参考にして、図4-6に示すように安全側で簡明な経年パターンを仮定した。すなわち、パッケージは浸漬後15年間は容器が健全であり、16年目以降は腐食貫通孔面積が1/30ずつ増加してゆくものとし、腐食の進行に伴い30年間でドラム缶が完全にな

くなるものと仮定した。

(7) 固化パッケージからの浸出予測モデル

固化パッケージからの浸出は、半無限媒体拡散源モデルに従うものとする。

このモデルは、IAEA方式⁽⁶⁴⁾として知られているものを基本として、放射性核種の崩壊を考慮して導かれている。評価に用いる固化体からの核種の拡散係数としては安全側の評価を行う観点から、表4-9に示すような浸出試験開始直後の大きな拡散係数を用いることとした。

以上の処分シナリオおよび核種漏出プロセスを基に評価した ^{60}Co 、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の処分施設からの漏出量予測結果を図4-7に示す。

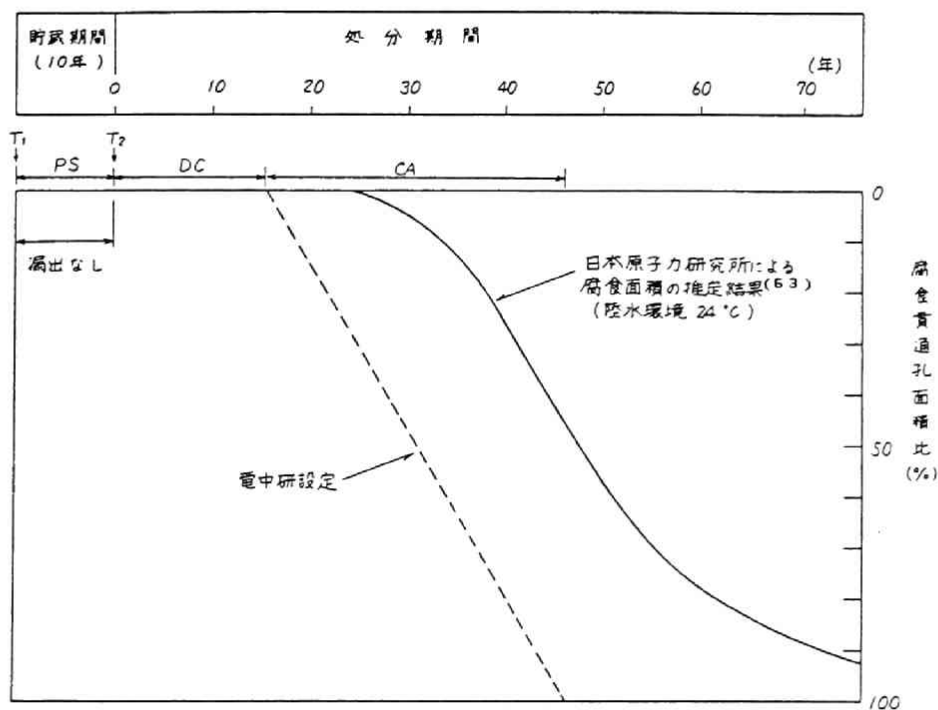


図 4-6 腐食経年パターン of 仮定 (文献(60)より引用)

表 4-9 パッケージの核種拡散係数 (文献(60)より引用)

パッケ ー ジ の 種 類	核 種 の 種 類		
	^{60}Co	^{90}Sr	^{137}Cs
セメント固化パッケージ	7×10^{-8}	2×10^{-5}	5×10^{-5}
アスファルト固化パッケージ	6×10^{-9}	1×10^{-6}	1×10^{-6}
プラスチック固化パッケージ	9×10^{-8}	1×10^{-6}	1×10^{-6}

(単位: cm^2/day)

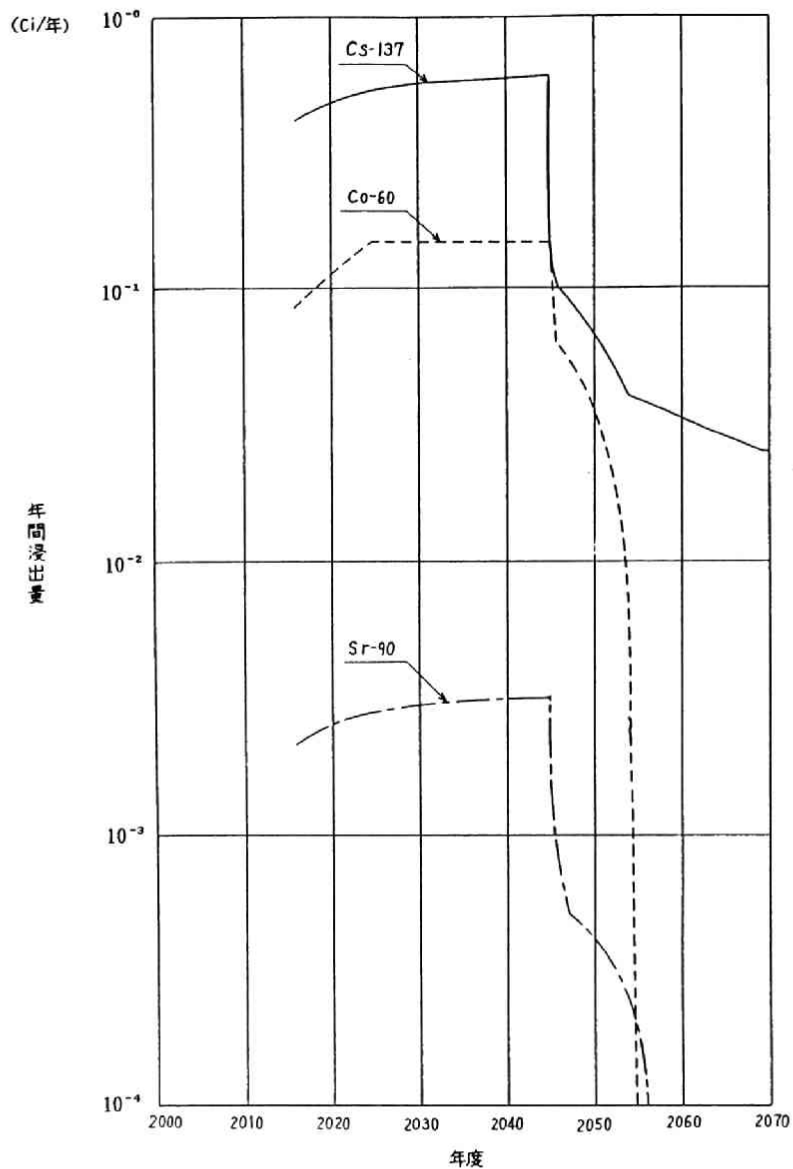


図 4-7 処分施設からの年間核種漏洩量（文献(60)より引用）

4.4.2 設定基本条件および入力パラメータの選定

(1) 設定基本条件

- ① 評価対象核種は、低レベル廃棄物に比較的多く含まれている ^{60}Co 、 ^{137}Cs および安全評価上の重要な核種の1つと考えられる ^{90}Sr である⁽⁶⁵⁾。
- ② ^{60}Co 、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の処分施設からの漏出量は、パッケージからの浸出量および施設からの雨水の浸入浸出量の評価結果（図4-7）を基に決定し表4-10のように与える。

表 4-10 被曝線量評価に用いた

核種浸出量の経年変化

核 種	浸出期間 (年)	浸 出 量 (Ci/yr)
^{60}Co	0 ~ 15	1.56×10^{-1}
	15 ~ 30	5.41×10^{-1}
	30 ~ 45	1.21×10^{-1}
	45 ~	0 ×
^{90}Sr	0 ~ 15	2.04×10^{-3}
	15 ~ 30	6.64×10^{-3}
	30 ~ 45	6.67×10^{-4}
	45 ~ 60	2.17×10^{-4}
	60 ~	0
^{137}Cs	0 ~ 30	8.32×10^{-1}
	30 ~ 60	8.23×10^{-2}

- ③ 線量評価地点は、原則として処分場の敷地境界とする。
- ④ 評価対象者は、評価地点で得られる地下水を飲料水とし、農、畜産物ならびに周辺水域でとれる淡水・海産物のみを摂取するものとする。
- ⑤ 地震・津波および異常気象によって処分場が冠水し処分場表面土壌が直接的に漏出核種によって汚染され再浮遊により大気経路を通して汚染が拡散する事象は考えない。
- ⑥ 個人（成人）の全身に対する内部被曝線量を評価する。子供および乳児に対する線量は成人の各々 2.5倍、2 倍となる。また内部被曝線量の評価は、基本的には I C R P の Pub.2⁽⁶⁶⁾ に従うものとする。

(2) サイト条件およびパラメータの設定

サイト条件は、我国の海岸地域に多く見られる地質条件、気象条件についての調査結果を基に選定した。処分場を含むサイトのモデルを図 4-8 に示す。

評価結果に大きな影響を与える地下水流速は、一般の地下水流動解析の際に用いられる解析地層モデルの境界端の地下水位を固定し 流動方程式 (2-12) を有限要素法を用いた準 3 次元解析によって得られた結果⁽⁶⁷⁾を基に海、沼、河川へ向う代

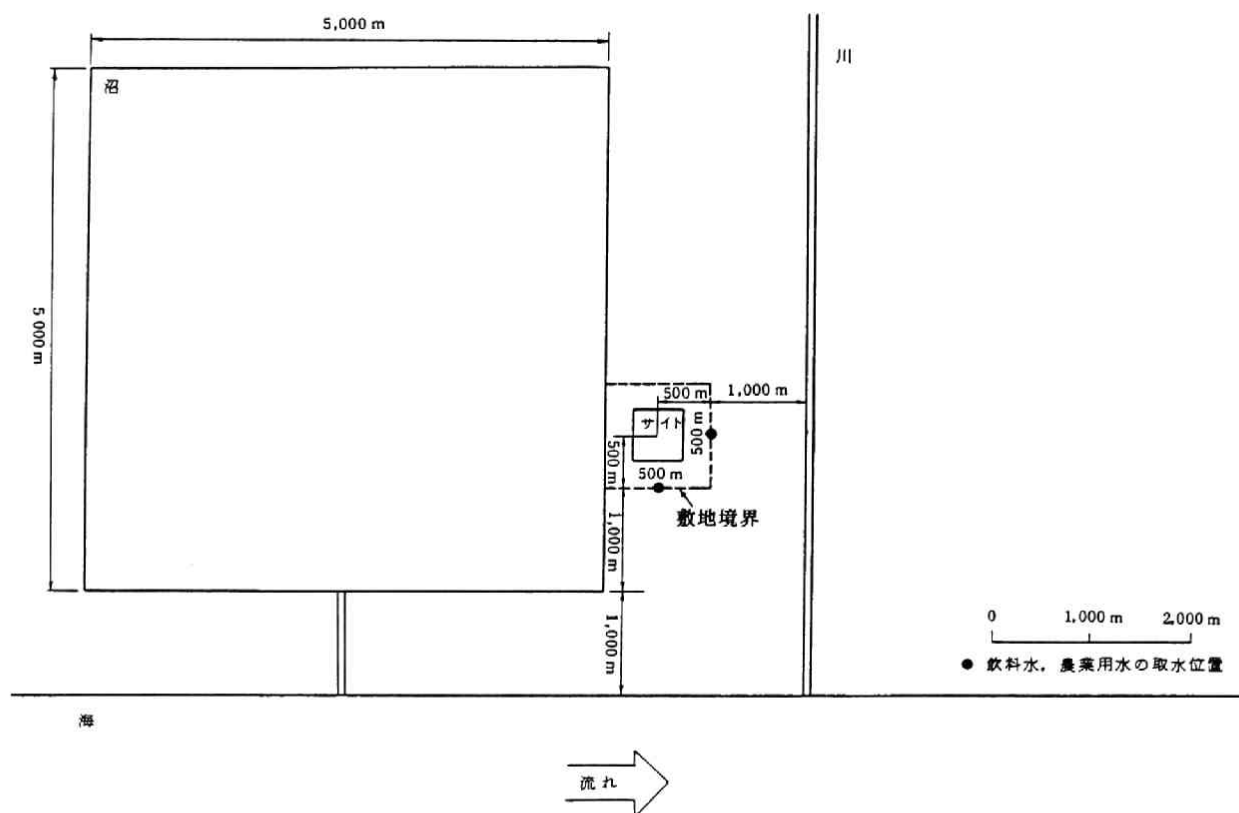


図 4-8 サ イ ト の 立 地 条 件

表的地下水流ごとに流速を与えた（ちなみに、川へ向かう地下水は 平均 94m/yで、沼へ向かう地下水は平均126m/y、海へ向かう地下水は平均 63m/yで移動するものとした）。また地下水流速同様に結果を大きく左右する重要なパラメータである土壌分配係数値としては、地層構成土壌の特性を考慮して過去の実験結果等の調査⁽⁶⁵⁾を参考に現実的な値を設定した。線量評価の基本となる環境中での核種濃度予測に必要なサイト条件および周辺環境条件を表4-11 に整理する。

被曝線量計算に必要な核種移行係数、濃縮係数および線量換算に必要な種々のパラメータは、線量評価指針および数多くの過去の評価において用いられた実績を有するデータを参考とした。また食物の摂取量については、日本人の食生活に関する統計資料⁽⁶⁹⁾に基づいた一般的な値を設定した（表4-11 参照）。

4.4.3 被曝線量計算結果

被曝線量評価地点の設定に当たっては、線量評価に大きく影響を及ぼすと考えられる地下水および農業用水の取水位置と地下水流速の関係について、処分場の敷地境界より外側

表 4-11 被曝線量評価に用いたサイトおよび食物連鎖パラメータ

サ イ ト お よ び 環 境 条 件	処分施設面積		500 × 500 = 250,000 (m ²)			
	有効降雨量		900 (mm/y)			
	通 気 層	空 隙 率	0.4	帯 水 層	空 隙 率	0.4
		水分飽和度	0.7		地下水流速	$\left\{ \begin{array}{l} \text{海: } 0.173 \\ \text{川: } 0.258 \text{ (m/day)} \\ \text{沼: } 0.345 \end{array} \right.$
		土 壤 密 度	2.5 (g/cm ³)		土 壤 密 度	2.5 (g/cm ³)
		分配係数	$\left\{ \begin{array}{l} {}^{60}\text{Co: } 100 \\ {}^{90}\text{Sr: } 50 \text{ (ml/g)} \\ {}^{137}\text{Cs: } 1,000 \end{array} \right.$		分配係数	$\left\{ \begin{array}{l} {}^{60}\text{Co: } 10 \\ {}^{90}\text{Sr: } 5 \text{ (ml/g)} \\ {}^{137}\text{Cs: } 100 \end{array} \right.$
		地 層 厚 さ	3 (m)		地 層 厚 さ	1 (m)
		標準拡散係数	10 (cm)		標準拡散係数	10 (cm)
	海 洋	処分場中心からの距離		2,500 (m)		
		流 速	(沖合 10 km)	8.6 × 10 ⁴ (m/day)		
		拡 散 係 数	(沖合方向)	10 ³ (cm ² /sec)		
		拡 散 係 数	(流れ方向)	5 × 10 ³ (")		
	湖 沼	処分場中心からの距離		500 (m)		
		面 積	5,000 × 5,000 = 2.5 × 10 ⁷ (m ²)			
深 さ		1.0 (m)				
河 川		処分場中心からの距離		1,500 (m)		
	川 幅	5.0 (m)				
	流 速	3.0 (m/sec)				
	深 さ	5.0 (m)				
食 物 連 鎖	農産物への核種移行係数		海産物への核種濃縮係数		淡水産物への核種濃縮係数	
	1.0 (⁶⁰ Co, ⁹⁰ Sr, ¹³⁷ Cs)		⁶⁰ Co : 100 ⁹⁰ Sr : 0.5 (ml/g) ¹³⁷ Cs : 30		⁶⁰ Co : 20 ⁹⁰ Sr : 5 (ml/g) ¹³⁷ Cs : 400	
	摂 取 量	海 産 物	94.9 (kg/y・人)	農 産 物	158.5 (kg/y・人)	
		淡 水 産 物	10.0 (")	畜 産 物	241.2 (")	
	飲 料 水	730 (l/y・人)				

で被曝線量がどのように変化するかを予備的に検討した (図 4-9 参照)。この結果、ここで実施する陸地処分の安全評価のための被曝線量評価は、処分場サイトの敷地境界上で行えば十分安全側の評価が得られることが明らかとなった。

表 4-11 を基に ${}^{60}\text{Co}$, ${}^{90}\text{Sr}$, ${}^{137}\text{Cs}$ が単独で浸出した場合に陸地処分場敷地境界上での各核種の帯水層での最大濃度と各食物摂取経路を通じての最大被曝線量および合計線量を整理して表 4-12 に示す。また図 4-10 に敷地境界上での各核種ごとの被曝線量および合計線量 (最大) の経年変化を示す。

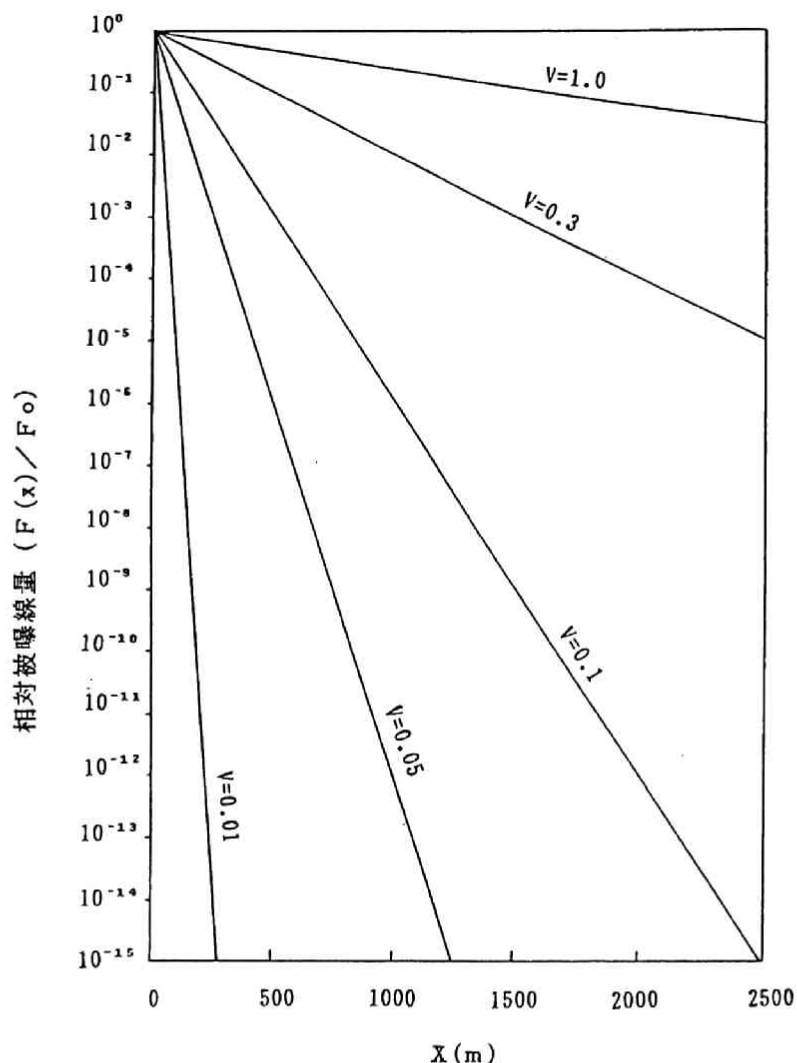


図4-9 処分場敷地境界からの距離および地下水流速の大きさと地下水経路を通じて ^{90}Sr によって与えられる被曝線量の相対変化

X ; 処分場敷地境界からの距離
 $F(x)$; 処分場敷地境界から X m 地点での線量値
 F_0 ; 処分場敷地境界上での線量値
 V ; 地下水流速 (m/day)

4.4.4 被曝線量評価

前節までの計算結果を基に考察すると最も被曝線量結果に影響を与える核種は、 ^{90}Sr であり、他核種からの寄与は殆ど無視し得る程度である。その理由は、 ^{90}Sr は土壌への吸着性が弱く半減期が比較的に長いためである。その結果 ^{90}Sr の線量評価結果に及ぼす影響は著しく大きくなる。また最も大きな線量を与えるのは、処分場から地下水によって河川へ移行する地下水経路による場合である。その場合、最も大きな被曝線量を与える食物摂取経路は、飲料水ならびに耕作物からの経路であり、我国固有の被曝経路と考えられ

ていた海産物および淡水産物摂取経路からの寄与は無視できる程度である。

一般公衆の受ける最大被曝線量は、処分後 270年目に $0.003(\text{mrem}/\text{y})$ となり、その後暫時減少する。この値は、過去に実施された試験的海洋投棄⁽²⁾ に対し 評価された結果より一桁低い結果となっており、ICRP が勧告している一般公衆への被曝線量許容値 $(500\text{mrem}/\text{y})$ よりも $1/10^5$ 以下、また我国で一般公衆が環境より受ける自然放射線⁽⁷⁰⁾ $(100\text{mrem}/\text{y})$ よりも $1/3 \times 10^8$ 以下と低いものである。これらの考察を基に、さらに将来より詳細な評価を行えば低レベル廃棄物の陸地処分により一般公衆の受ける被曝線量は無視し得る程に低いものと期待される。

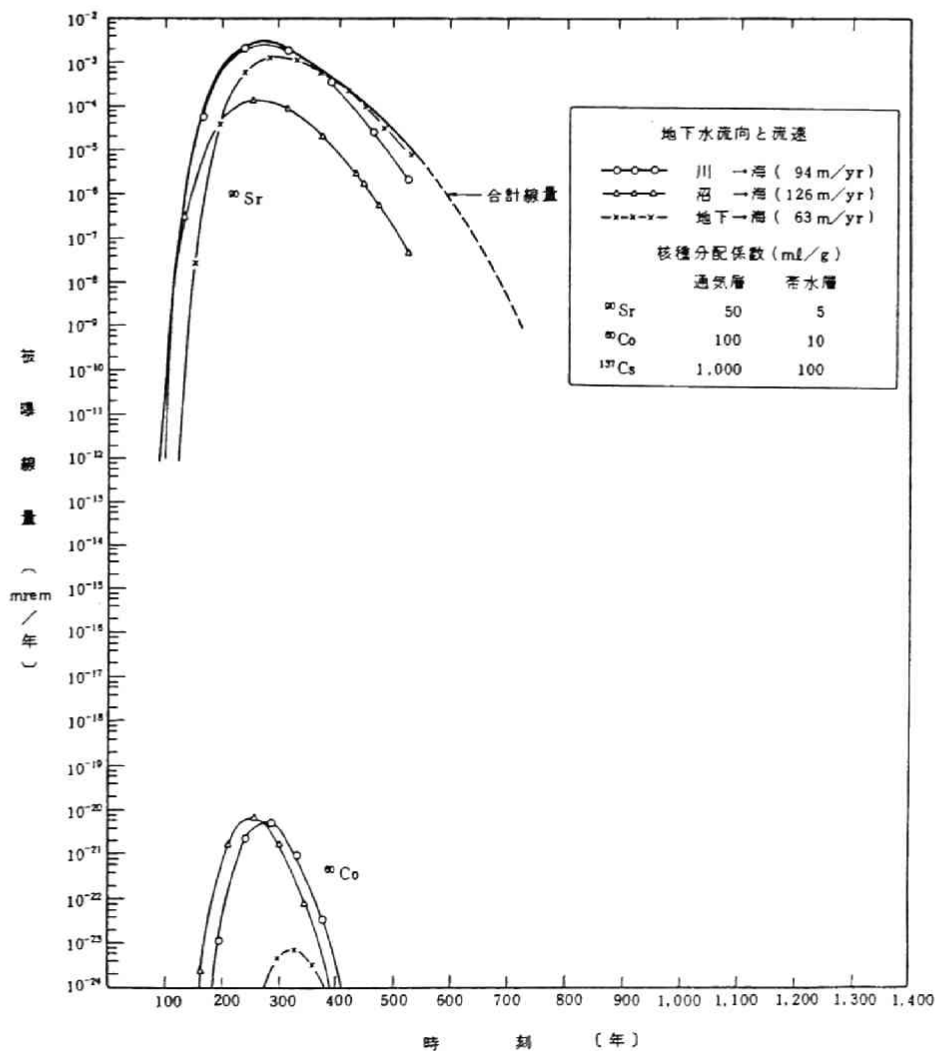


図 4-10 被曝線量の時間変化

[通気層厚さ 3m, 取水位置は処分施設
の中心から 500m の敷地境界]

表 4-12 処分場敷地境界における被曝経路ごとの最大被曝線量

(単位: mrem/yr)

核種 被曝 経路ご との最大 被曝線量	^{60}Co			^{90}Sr			^{137}Cs (銩)
	海	川	沼	海	川	沼	海 川 沼
	2.98×10^{-20} (330)	2.23×10^{-20} (270)	6.22×10^{-25} (255)	1.66×10^{-11} (300)	3.15×10^{-11} (270)	4.27×10^{-11} (270)	(-) (-) (-)
飲料水	6.64×10^{-25} (330)****	4.97×10^{-22} (270)	0	2.30×10^{-4} (300)	4.39×10^{-4} (270)	0	(-) (-) (-)
耕作物	3.53×10^{-24} (330)	2.65×10^{-21} (270)	0	8.48×10^{-4} (300)	1.61×10^{-3} (270)	0	(-) (-) (-)
畜産物	3.15×10^{-24} (330)	2.36×10^{-21} (270)	3.00×10^{-21} (255)	5.03×10^{-5} (300)	9.61×10^{-5} (270)	1.49×10^{-5} (270)	(-) (-) (-)
炭水産物	NG*****	NG	3.82×10^{-21} (255)	NG	NG	1.03×10^{-4} (270)	(-) (-) (-)
海産物	NG	NG	9.92×10^{-21} (255)	NG	NG	6.61×10^{-11} (270)	(-) (-) (-)
合計線量	7.34×10^{-24} (330)	5.50×10^{-21} (270)	6.82×10^{-21} (255)	1.13×10^{-3} (300)	2.15×10^{-3} (270)	1.18×10^{-4} (270)	(-) (-) (-)

* : 海 (処分場→海), 川 (処分場→川), 沼 (処分場→沼)

** : 処分場境界での地下水中濃度

*** : 被曝線量

**** : () は処分開始後の経過年数

***** : 10^{-30} 以下は NG とした。

(注) : 1500 年までの計算時間の中では、敷地境界まで核種が移動しないので、 ^{137}Cs の各項は (-) で表わす。

4.5 西山地区におけるフォールアウト・プルトニウムによる被曝線量評価

第2章、第3章で述べたように、長崎市西山地区には1945年の原爆の際にフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ が集中的に降下し、我国の平均的なフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の30倍以上の $^{239+240}\text{Pu}$ が地表面近傍に蓄積している。このフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ が、西山住民に与える放射線学的影響について、本章で述べた評価モデルを用いて以下に試算する。この評価では、プルトニウムの放出する γ 線のエネルギーがきわめて低いこと、および西山に蓄積している $^{239+240}\text{Pu}$ の95%以上が ^{239}Pu であること⁽⁷¹⁾を考慮して、 ^{239}Pu によ

る内部被曝線量のみについて検討する。さらに内部被曝線量の評価に際しては、以下の仮定を設けるものとする。

1. 被曝線量評価のための ^{239}Pu 摂取経路としては、①食物を通しての経口摂取経路、②呼吸による吸入経路について評価する。
2. 飲料水としては、井戸による地下水のみを飲用するものとする。
3. 農・畜産物は西山地区で生産されたもののみを摂取するものとする。
4. 海・淡水産物については、これら産物を生産する海・淡水域が西山地区には存在しないので、本評価の経路には含めない。
5. 大気中 ^{239}Pu の西山での実測データがないので、呼吸経路からの評価では、沈着した ^{239}Pu の再浮遊による汚染空気の吸入のみを評価する。

(1) 食物摂取経路からの被曝線量

a. 地下水経路による ^{239}Pu の摂取量

地下水中 ^{239}Pu 濃度は、西山での土壌コア採取の際に測定した $0.66(\text{fCi/l})^{(72)}$ を用いることとする。年間を通じ地下水からの ^{239}Pu の摂取量は、年間飲料水摂取量を $730(\text{l/y})$ （表4-13 参照）とすると、 $0.48(\text{pCi/y})$ となる。

b. 農・畜産物経路による ^{239}Pu の摂取量

西山地区での農耕地での ^{239}Pu 濃度は、岡島⁽⁷³⁾等によれば、未農耕地の測定結果（表2-5参照）よりも低く 225pCi/kg と報告されている。この原因は、未農耕地では、地表面の近傍での ^{239}Pu は、著しく大きい、深度方向に指数関数的に急激に減少する。一方農耕地では、地表から 30cm 深さまでが耕され、一様に攪乱されていることによる影響と考えられる。農・畜産物による ^{239}Pu の年間摂取量は、農耕地での ^{239}Pu 濃度および表4-13 に上げた移行係数と年間食物摂取量を基に概算すると、 37pCi/y となる。

c. 地下水および農・畜産物からの内部被曝線量

^{239}Pu の年間摂取量 37.5pCi/y による全身ならびに決定臓器である骨に対する被曝線量は、表4-13 の線量換算係数を用いて試算すると、各々 $2.49 \times 10^{-3}\text{mrem/y}$ 、 $2.97 \times 10^{-2}\text{mrem/y}$ となる。

表 4-13 フォールアウト²³⁹Puによる被曝線量評価に必要なパラメータ

	西 山	西山以外の長崎地区
耕作土壌 ²³⁹ Pu濃度	225 (pCi/kg)	8.5 (pCi/kg)
未耕作土壌 ²³⁹ Pu濃度	1000 (pCi/kg)	33.3 (pCi/kg)
地下水中 ²³⁹ Pu濃度	0.66 (fCi/l)	0.02(fCi/l)

農・畜産物への ²³⁹ Puの移行係数						
土壌から植物への移行係数		飼料から畜産物への移行係数				
食料(wet)	飼料(dry)	牛乳	牛肉	豚肉	鶏肉	卵
5×10^{-4}	1×10^{-3}	1×10^{-7}	1×10^{-5}	1×10^{-2}	1.6×10^{-4}	7.6×10^{-3}

家畜の飼料と水の摂取量		
家 畜	飼 料 (kg,dry/d)	水 (l/day)
乳牛	16	70
肉牛	12	30
豚	4.2	15
鶏	0.12	0.5

人(成人)の農・畜産物と水の摂取量および空気吸入量	
食 品	摂取量 (kg/yまたはl/y)
農作物 (米,野菜,果物)	158.5
牛肉	3.6
豚肉	9.6
鶏肉	7.8
牛乳	219
卵	15
水	730
空気	7.3×10^6

沈着 ²³⁹ Puの再浮遊係数 10^{-3} m^{-1}	
---	--

²³⁹ Pu線量換算係数 (mrem/ μ Ci)		
	経口摂取	経気摂取
全身	6.65×10	5.54×10^5
骨	7.93×10^2	6.60×10^6

(2) 汚染空気の吸入による被曝線量

^{239}Pu では経口摂取に比べ、経気道摂取の場合に臓器への移行率が著しく高いことおよび地表面へ降下沈着したフォールアウト ^{239}Pu の大部分（約90%）が表層土壌に蓄積されていることを考慮すると、再浮遊による汚染空気の吸入による影響は、西山のように局地的に ^{239}Pu フォールアウトが集中降下した地域では、評価する意義があると考えられる。

地表面の ^{239}Pu による汚染密度は、表2-5に示す測定結果（西山での平均 1000 pCi/kg）および地表面近傍の空隙率 0.7、土壌密度 2.6g/cm³、再浮遊が問題となる土壌厚さ 1cmを用いて $7.8 \times 10^{-3} \text{Ci/m}^2$ と推定できる。また再浮遊係数としては、Bennett⁽⁷⁴⁾が表層 1cmの土壌に対する舞上がりに対し用いた 10^{-3}m^{-1} を採用し、年間に吸入される ^{239}Pu 量を推定すると 0.06pCi/yとなる。この ^{239}Pu 負荷量に対する内部被曝線量は、表4-13に示す線量換算係数を用いて試算すると、全身および骨に対し、各々 0.03mrem/y、0.4mrem/yとなる。

西山における ^{239}Pu の食物を通じての経口および再浮遊によって汚染された空気の吸入による合計被曝線量は、

全身に対し	0.032 mrem/y
骨に対し	0.43 mrem/y

となる。

一方、西山を除く他の長崎地区では、土壌中 ^{239}Pu 濃度が西山に比べて1/30程度であるので、農・畜産物摂取および汚染土壌の再浮遊による吸入摂取による被曝線量は西山の1/30で、それらは各々

全身に対し	0.001 mrem/y
骨に対し	0.014 mrem/y

となる。ちなみに、西山以外の長崎地区と同じように局地フォールアウト ^{239}Pu の集中降下が観測されなかったニューヨーク市で、食品を通じ、年間に摂取される ^{239}Pu は、1972～1974年の調査で1.6pCi/yという値が調査報告⁽⁷⁵⁾されている。この値は、本評価で推定した西山を除く長崎地域での食物からの ^{239}Pu の摂取量 1.3pCi/yともよく一致している。

以上、西山および西山以外の長崎地域でのフォールアウト ^{239}Pu の食物および汚染土壌の再浮遊からの人体への摂取による内部被曝線量を推定した。その結果、西山を含めた長崎地域での ^{239}Pu フォールアウトによる被曝線量は、西山で最大 0.4mrem/y であるが、これは一般に自然放射線からの外部被曝線量 100mrem/y に比べても無視し得る程度であった。

4.6 まとめ

本研究においては、陸地処分の安全評価の考え方および評価手法の検討を行いケース・スタディを実施した。

4.2節では、陸地処分の際に処分場より漏出した放射性核種による周辺公衆への影響を評価するための、放射性核種の環境移行モデルについてEPA、NRCおよび原子炉の安全審査指針等を基に検討した。その検討に際しては、処分場から漏出した核種が人体へ移行するまでの全経路を網羅し、各経路ごとに被曝線量評価ができるように配慮した。また評価時間の短縮と最終結果への計算誤差を小さくするために、解析解の組み合わせによって評価するよう心掛けた。

4.3節では、4.2で検討した放射性核種の環境移行モデルについて（空隙率、有効降雨量、飽和度、分配係数、地下水流速、地層厚さ等）パラメータ感度解析を行い、最終の被曝線量評価までを含め結果に大きく影響を及ぼす重要なパラメータとしては、土壌分配係数 $>$ 有効降雨量 \geq 地下水流速であることが明らかとなった。また放射性核種の放出パターンの違いが、被曝線量評価に及ぼす影響を、単位量（ 1Ci ）の放射能を①瞬間放出、②定常放出、③一定期間定常放出した場合について線量評価を行い検討した。その結果放出パターン①と②間では、最大で線量値に1桁程度の差が生じたが、②、③の間ではほぼ同程度の線量値となった。さらに単位量に対し、各放出パターンごとに線量評価を前もって行っておけば、事故時に大量の放射能が環境へ放出された場合の簡易評価にも活用できる。

4.4節では、任意に選択した陸地処分サイトの立地条件と、我国の処分シナリオに従い、固体放射性廃棄物を陸地処分した際に周辺公衆の受ける被曝線量を評価した。その結果最も大きな被曝線量を与える経路は、地下水を飲料水とし地下水で灌漑した耕作物から

の経路であり、処分施設が若干内陸部（海から2500m以上離れている）にある場合には、
我国固有の被曝経路と考えられている海産物等の経路は無視できることが明らかとなった。
また今回の評価結果では固体廃棄物に含まれる割合は、小さくとも ^{90}Sr の影響が大きかった。
このことは、 ^{90}Sr のように分配係数が小さく比較的地中を速く移動し、しかも半減期が比較的長く、人体への放射線学的影響が大きい核種が含まれている場合には、核種の移動の起動力となる水の移動そのものを押さえる必要があることを、この結果は示唆している。

4.5 節では、本章で検討した安全評価手法を用いて、1945年の長崎原爆の際に、未核分裂 ^{239}Pu フォールアウトが集中的に降下し、地表面近傍に高濃度で蓄積している長崎市西山地区での住民の受ける ^{239}Pu による放射線学的影響について考察した。検討した ^{239}Pu の摂取経路は、食物による経口摂取と、沈降 ^{239}Pu の舞上がり（再浮遊）による経気道摂取であり、2つの経路による被曝線量は、全身及び骨に対し、各々0.03, 0.43mrem/yであり、自然放射線による外部被曝線量 100mrem/y に比べても無視し得る程度であった。また西山を除くその他の長崎地区での ^{239}Pu による影響は、西山の1/30以下であると推定された。

参考文献

- (1) 馬原，河西，五十嵐，満木，尾崎：“低レベル放射性廃棄物陸地処分の被曝線量評価”，電中研研究報告：385014，昭和60年12月
- (2) 原子力委員会，1980，“低レベル放射性廃棄物試験投棄について”，原子力委員会月報 Vol.25, No.8, p.19-20.
- (3) 科学技術庁原子力安全局原子力安全調査室，1984，“発電用軽水型原子炉施設周辺の線量目標値に対する評価指針について”，原子力安全委員会安全審査指針集，p.60-121，大成出版社
- (4) U. S. NRC : 1981, “Draft Environmental Impact Statement on 10 CFR Part 61 Licensing Requirements for Land Disposal of Radioactive Waste” NUREG-0782 Sept.あるいは，1981, System Analysis of Shallow Land Burial, Burial, NUREG/CR-1963 March,など。
- (5) Little, C. A., et. al, 1981,: Environmental Assessment Model for Shallow Land Disposal of Low-Level Radioactive Wastes, Interim Report, ORNL/TM-7943.
- (6) Robertson, J. B, 1979, : Shallow Land Burial of Low-Level Radioactive Wastes in The United States-Geohydrological and Nuclide Migration Studies, IAEA-SM-243/152.
- (7) Grisak, G. E. and Jackson, R. E, 1978, : An appraisal of the Hydrogeological Processes Involved in Shallow Subsurface Radioactive Waste Management in Canadian Terrain, Cat. No. En36-502/84, Inland Waters Directorate Water Resources Branch Ottawa, Canada.

- (8) Stallman, F. W., and F. B. K. Kam. 1973. ACRA-A Computer Program for the Estimation of Radiation Doses Caused by a Hypothetical Reactor Accident. ORNL-TM-4082, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee.
- (9) Oak Ridge National Laboratory. 1974. RSIC Computer Code Collection : ACRA-II Kernel Integration Code Estimation of Radiation Doses Caused by a Hypothetical Reactor Accident. CCC-213, Oak Ridge, Tennessee.
- (10) Moore, R. E. 1975. AIRDOS; A Computer Code for Estimating Population and Individual Doses Resulting from Atmospheric Releases of Radionuclides from Nuclear Facilities. ORNL-TM-4687, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee.
- (11) Moore, R. E. 1977. The AIRDOS-11 Computer Code for Estimating Radiation Dose to Man from Airborne Radionuclides in Areas Surrounding Nuclear Facilities. ORNL-5245, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN.
- (12) Moore, R. E., et al. 1979. AIRDOS-EPA: A Computerized Methodology for Estimating Environmental Concentration and Dose to Man from Airborne Releases of Radionuclides. EPA 520/1-79-009 (ORNL-5532). U. S. Environmental Protection Agency, Washington, D. C.
- (13) Martin, J. A., Jr., C. B. Nelson, and P. A. Cuny. 1974. AIREM Program Manual: A Computer Code for Calculating Doses, Population Doses, and Ground Depositions Due to Atmospheric Emissions of Radionuclides. EPA-520/1-74-004, U. S. Environmental Protection Agency, Washington, D.C.
- (14) Iijima, T., and T. Shiraishi. 1979. ANDOSE - A Computer Code for Calculating Annual Doses to Man from Routine Releases of LWR Effluents for the

Purpose of Evaluating Compliance with JAEC's Guide for Dose Objectives.
JAERI-M-8481, Japan Atomic Energy Research Institute.

- (15) Shaeffer, D. L., and E. L. Etnier. 1979. AQUAMAN - A Computer Code for Calculating Dose Commitment to Man from Aqueous Releases of Radionuclides. ORNL/TM-6618, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee.

- (16) Napier, B. A., R. L. Roswell, W. E. Kennedy, Jr., and D. L. Streng. 1980a. ARRRG and FOOD - Computer Programs for Calculating Radiation Dose to Man from Radionuclides in the Environment. PNL-3180, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA.

- (17) Hirayama, A., et al. 1977a. Dose Calculation Method for the Marine Environment of Tokai Reprocessing Plant and Pathway Dosimetry Code BEACH-III. PNCT841-77-55, TokaiWorks, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation, Tokai, Ibaraki, Japan (in Japanese).

- (18) Clarke, R. H. 1972. Multi-Compartment Model for Studying the Dose-Intake Relationship for Radioactive Isotopes, Report RD/B/N2291, Central Electricity Generating Board, United Kingdom.

- (19) Bonzon, L. L., and J. B. Rivard. 1970. Computational Method for Calculation of Radiological Dose Resulting from Hypothetical Fission Product Release, SC-RR-70-338, Sandia Laboratories, Albuquerque, New Mexico.

- (20) Gerdingh, R. F. 1979. "COLDOSE: A Computer Code to Assess Collective Doses from Airborne Radionuclides" in Proceedings of 1st International Conference on Health Effects of Energy Production. P. 325 (abstract), Atomic Energy of Canada AECL-6958 Limited, Chalk River Nuclear Laborato-

ries, Ontario, Canada.

- (21) Specht, E., et al. 1975. Description of the COMRADEX-II Code.
TI-001-130-048, Atomics International, Canoga Park, California:

- (22) Otter, J. M., and P. A. Conners. 1975. Description of the COMRADEX-III Code, Report TI-001-130-053, Atomics International. Canoga Park, California:

- (23) Ritchie, L. T., J. D. Johnson and R. M. Blond. 1982. Calculations of Reactor Accident Consequences Version 2 (CRAC2) Computer Code/User's Guide. NUREG/CR-2326 (SAND81-1994), U.S. Nuclear Regulatory Commission, Washington D.C.

- (24) Piepho, M. G. 1981. CRACOME Description and User's Guide. HEDL-TME 80-56, Hanford Engineering Development Laboratory, Richland, Washington.

- (25) Baes, C. F., III, and C. W. Miller, 1981. "CRRIS: A Computerized Methodology for Assessing the Human Impact of Radionuclides Released to the Atmosphere." Presented at the annual meeting of the Health Physics Society, Louisville, Kentucky, on June 21-25.

- (26) Houston, J. R., D. L. Streng, AND E. C. Watson. 1976. DACRIN - A Computer Program for Calculating Organ Dose from Acute or Chronic Radionuclide Inhalation, BNWL-B-389. Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington.

- (27) Mac Donald, H. F. 1971. "Assessment of Environmental Hazards Following Nuclear Reactor Accidents". In Rapid Methods for Measuring Radioactivity

in the Environment, Symposium Proceedings, Munich, 1971, pp.43-54,
STI/PUB/289, International Atomic Energy Agency, Vienna.

- (28) Cooper, R. E. 1972. EGAD - A Computer Program to Compute Dose Integrals from External Gamma Emitters. DP-1304, E. I. duPont de Nemours & Co., Savannah River Laboratory, Aiken, South Carolina.

- (29) Napier, B. A., W. E. Kennedy, Jr. and J. K. Soldat. 1980B. PABLM - A Computer Program to Calculate Accumulated Radiation Doses from Radionuclides in the Environment. PNL-3209, Pacific Northwest Laboratory, Richland, WA.

- (30) Eckerman, K. F., et al. 1980. User's Guide to GASPAR. NUREG-0597, U. S. Nuclear Regulatory Commission, Washington, D.C.

- (31) Killough, G. G., P. S. Rohwer, and W. D. Turner. 1975. INREM: A FORTRAN Code Which Implements ICRP 2 Models of Internal Radiation Dose to Man. ORNL-5003, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee.

- (32) Killough, G. G., D. E. Dunning, Jr. and J. C. Pleasant. 1978. INREMII: A Computer Implementation of Recent Models for Estimating the Dose Equivalent to Organs of Man from an Inhaled or Ingested Radionuclide. NUREG/CR-0114 (ORNL/NUREG/TM-84), Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee.

- (33) Hubschmann, W., and D. Nagel. 1975. ISOLA II: A FORTRAN IV Code for the Calculation of the Long-Term Alpha and Beta Dose Distribution in the Vicinity of Nuclear Installations. Report KFK-2210, Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe, Federal Republic of Germany (in German).

- (34) Streng, D. L., and E. C. Watson. 1973. KRONIC - A Computer Program for Calculating Annual Average External Doses from Chronic Atmospheric Releases of Radionuclides. BNWL-B-264, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington.
- (35) Simpson, D. B., and B. L. McGill. 1980. User's Manual for LADTAP-II-A Computer Program for Calculating Radiation Exposure to Man from Routine Release of Nuclear Reactor Liquid Effluents. NUREG/CR-1276, U. S. Nuclear Regulatory Commission, Washington, D.C.
- (36) Streng, D. L., and T. J. Bander. 1981. MILDOS - A Computer Program for Calculating Environmental Radiation Doses from Uranium Recovery Operations. NUREG/CR-2011 (PNL-3767), U. S. Nuclear Regulatory Commission, Washington, D.C.
- (37) Eckert, R. J. 1964. A FORTRAN Program for the Calculation of the Potential Hazards from an Accidental Fission-Product Release-M0142. WAPD-TM-348. Bettis Atomic Power Laboratory. Illinois.
- (38) Heller, F., W. Schikarski and A. Wickenhauser. 1967. MUNDO: A Digital Code for Computing Accident Dose Rates in Reactor Environs. KFK-653, EUR-3684d, Institut für Angewandte Reaktorphysik, Karlsruhe, Federal Republic of Germany (in German); also EURFNR-461, U. S. - Euratom Fast Reactor Exchange Program (in English).
- (39) Helton, J. C., and P. C. Kaestner. 1981. Risk Methodology for Geologic Disposal of Radioactive Waste: Model Description and User Manual for Pathways Model. NUREG/CR-1636, Vol. 1 (SAND78-1711), Sandia National Laboratories, Albuquerque, New Mexico.

- (40) Hirayama, A., et al. 1977b. PLUTO - A Program to Compute Cloud Gamma Dose by Point-Kernal Integration. PCNT843-77-05, Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation, Tokai, Ibaraki, Japan (in Japanese).
- (41) Little, C. A., D. E. Fields, G. Hiromoto, and C. J. Emerson. 1981. Environmental Assessment Model for the Shallow Land Disposal of Radioactive Waste. (Interim Progress Report for May 1980 - April 1981). ORNL/HASRD-123, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee.
- (42) Houston, J. R., and K. R. Heid. 1975. PUDEQ: A Computer Code for Calculating Dose Equivalent from Internal Deposition of Plutonium at Hanford. BNWL-B-450. Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington.
- (43) Cooper, R. E. 1968. RADOS - A Code to Estimate Gamma Dose from a Cloud of Radioactive Gases, DP-1098 (Rev.1), E. I. dupont de Nemours & Co., Savannah River Laboratory, Aiken, South Carolina.
- (44) Martin, J. A., C. Robbins, C. B. Nelson, R. D. Cousins, Jr., and M. A. Culliton. 1976. A Computer Code (RVRDOS) to Calculate Population Doses from Radioactive Liquid Effluents and an Application to Nuclear Power Reactors on the Mississippi River Basin. U. S. EPA Technical Note ORP/EAD-76-4.
- (45) Streng, D. L., E. C. Watson and J. R. Houston. 1975. SUBDOS - A Computer Program for Calculating Individual External Doses from Accidental Atmospheric Releases of Radionuclides. BNWL-B-351, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington.

- (46) Booth, R. S., and S. V. Kaye. 1971. A Preliminary Systems Analysis Model of Radioactivity Transfer to Man from Deposition in a Terrestrial Environment. ORNL-TM-3135, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee.
- (47) Fryer, L. S. 1978. A Guide to TIRION 4 - A Computer Code for Calculating the Consequences of Releasing Radioactive Material to the Atmosphere. SRD R 120, United Kingdom Atomic Energy Authority, United Kingdom.
- (48) Bramiti, L., et al. 1973. "VADOSCA: A Simple Code for the Evaluation of Population Exposure Due to Radioactive Discharges." In Proceedings of the Third International Congress of the International Radiation Protection Association. Washington, D. C., September 9-14, 1973. CONF-730907-P2, pp.1072-1077.
- (49) Clarke, R. H. 1973. "The WEERIE Program for Assessing the Radiological Consequences of Airborne Effluents from Nuclear Installations," Health phys. 25:267-280.
- (50) Scherpelz, R. I., F. J. Borst and G. R. Hoenes. 1980. WRAITH - A Computer Code for Calculating Internal and External Doses Resulting from an Atmospheric Release of Radioactive Material. NUREG/CR-1690 (PNL-3382), U. S. Nuclear Regulatory Commission, Washington, D.C.
- (51) Cooper, R. E. 1969. "WRED, A Siting Code to Estimate Dose Probability Distribution from Measured Meteorology Data", Health Phys. 16:735-738.
- (52) Chester, R. O. 1974. Biological Dose and Radiological Activity from Nuclear Reactor or Nuclear Weapon Fission Products. ORNL-4996, Union Carbi-

de Corporation, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee.

- (53) R. B. Codell, D. L. Schreiber, 1979, "NRC Models for Evaluating the Transport of Radionuclides in Groundwater", Management of low level Radioactive waste, Vol. II, 1193.
- (54) U.S.NRC, Regulatory Guide 1.109, 1977 "Calculating of annual doses to man from routine releases of reactor effluents for the purpose of evaluating compliance with 10 CFR part 50, Appendix I", Rev.1.
- (55) 原子力安全研究協会, 固体廃棄物処理処分専門委員会保管分科会: "放射性固体廃棄物の陸地保管施設の安全評価—被曝線量評価モデルの構成", 昭和57年1月
- (56) 田中, 和田, 満木, 馬原, 永倉, 飯嶋(原研), 市川(放医研), 1977 "使用済核燃料輸送の安全評価に関する調査報告書—海上輸送事故時の環境影響評価" 電中研依頼報告書: 377523
- (57) McCuen H. Richard, 1973, "The role of sensitivity analysis in hydrologic modeling", J. Hydrology, Vol. 18, 37-53.
- (58) Freshly D. Mark, et al., 1985, "Sensitivity analysis applied to unsaturated flow modeling of a retorted oil shale pile", Soil. Sci. Soc. Am. J., Vol. 49, 28-34.
- (59) 森沢真輔: 1977, 放射性廃棄物地中処分場の立地選定に関する工学的研究 (京都大学博士論文)
- (60) 河西, 五十嵐, 馬原, 満木, 1985, "低レベル放射性廃棄物陸地処分時における固化体中放射性核種漏出量算定手法の開発, 電中研研究報告: 385015.

- (61) 例えば，放射性廃棄物対策技術専門部会－3，1977，“放射性廃棄物の発生量の予測に関する調査報告書”，原子力安全委員会放射性廃棄物対策技術専門部会，研究開発分科会調査グループ。
- (62) 石川廣三，1977，“モルタル・コンクリート壁体の亀裂からの漏水について”，日本建築学会大会号，1976。
- (63) 前田，和達，今井，1984，“低レベル放射性廃棄物封入容器の腐食安全性実証試験”，放射性廃棄物フォーラム，’84講演録集，科学技術庁。
- (64) I A E A，1968，Technical Report Seport No.82.
- (65) 井上，森沢，1972，“放射性廃棄物地中処分場の立地選定(Ⅰ)”，日本原子力学会誌 Vol.14，P.522～530。
- (66) ICRP 1959，：Report of ICRP Committee II on Permissible Dose for Internal Radiation. International Commission on Radiological Protection. ICRP Pub.2, Pergamon Press
- (67) 河西，五十嵐，馬原，1986，“有限要素法による放射性核種地中移行解析手法の開発”，電中研研究報告：385026
- (68) 電力中央研究所 1982，：放射性核種の地中拡散に関する研究，電力共通研究依頼報告，（昭和57年度経過報告書）
- (69) 総理府統計局編 1982：第32回 日本統計年鑑
- (70) 資料 1982：原子力発電の安全性，8頁，（科学技術庁）

- (71) Komura K., Sakanoue M. and Yamamoto M., 1984, "Determination of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ratio in environmental samples based on the measurement of Lx/α -Ray activity ratio" Health phys., 46, 1213-1219.
- (72) Mahara Y., Kudo A., Kauri T., Santry D.C. and Miyahara S., 1988, "Mobile Pu in reservoir sediments of Nagasaki, Japan", Health Phys., (in press)
- (73) 岡島俊三, 島崎達也, 奥田生世, 塚 順子, 1982, "原爆による長崎西山地区のPu汚染の生態学的研究", 第25回日本放射線影響学会講演会要旨集 3-A-6, pp172.
- (74) Bennett, B.G., 1974, "Environmental pathways of transuranic elements" in Plutonium and other transuranium elements, U.S. Atomic Energy Comm. mission report Wash-1359, pp.131-154.
- (75) Bennett, B.G., 1976, "Eallout $^{239},^{240}\text{Pu}$ in diet. 1974 results", Health and Safety Laboratory environmental quarterly report HASL-306. New York.

第5章 結論

5.1 本研究の考察

本論文の主要部分は、4章より構成されている。本論文では、原子力施設（主に原子力発電所）から排出される放射性廃棄物を陸地に処分する際に、人間に対する放射線防護の立場から、陸地処分の安全性を客観的に評価する手法について論じた。その際特に、人間の生産活動の場ともなり陸地処分の際に核種移動に大きな遅延効果が期待される通気層を含めた浅層地中環境内での放射性核種の挙動について室内およびフィールド研究を中心に行ない浅層地中での核種移行現象の把握に力を注いだ。以下に本研究によって得られた主要成果を各章ごとに要約して示す。

第1章では、エネルギー需要の中で原子力の占める割合と位置づけについて概説した。その中で、今後原子力発電を進めてゆく上での問題点、つまり放射性廃棄物の処分が早急に解決を計らなければならない課題であることを明らかにした。放射性廃棄物の処分に関しては、各国とも陸地処分が最も現実的な方法であると考えていること、さらに我国においても低レベル放射性廃棄物は浅層地中処分、また高レベル放射性廃棄物は深層地層処分の予定であり、そのシナリオと計画について述べた。一方、人間に対する放射線防護の立場から陸地処分を実現させるには、安全評価手法の確立が必要である。このためには、環境へ放出された放射性核種の挙動を正確に予測評価しなければならないことを明らかにして本研究の必要性を説いた。

第2章では、まず通気層における放射性核種の移動について理論研究の変遷について整理した。通気層での水の移動の実測結果を考慮すると理論研究の初期に提案された核種の地中移動に関する井上の拡散理論は、概略評価の際にはきわめて実用的であると再評価した。不飽和浸透を基本とした通気層での核種移動理論は、通気層部での土壌含水率を圧力水頭の関数で表わすことにより飽和層つまり帯水層での核種移動の理論と統一して解決することができるようになった。通気層での核種移動において観測されるTailing現象を説明する方法として、土壌水を流動水と不動水とに区分する多成分系流れモデルが提案され現象がより精密に表現できるようになった。次に、本章の後半では、前述の理論研究支援の目的で実際に通気層内での土壌水および放射性核種の移動実態を把握するためにナチュラルアナログの1手法として天然に存在するフォールアウト核種活用の有効性について述

べた。フィールド研究は、1945年8月9日の長崎原爆の際に大量のフォールアウト核種が降下蓄積した長崎市西山地区において実施した。西山地区のシルト質ローム層での降水の不飽和浸透は、降水に含まれるHTOを指標として土中水HTO濃度分布の測定およびピストン流を基本とした押出し流れモデルでの解析結果ともほぼ一致した。その結果、西山シルト質ローム層内での降水浸透速度は、平均2.5m/yと推定された。この値は、Br⁻イオンによる降水浸透トレーサー試験においても確認された。このことより通気状態での西山シルト質ローム層内では、降水は飽和度に見合った分の土壤空隙をほぼピストン流的に流下していると結論できる。原爆より放出された²³⁹⁺²⁴⁰Pu、¹³⁷Cs、⁹⁰Srの西山シルト質ローム層内での降下と再分布を調査することにより、地中での各フォールアウト核種の移動速度を測定し遅延係数および分配係数を推定した。その結果、²³⁹⁺²⁴⁰Pu、¹³⁷Cs、⁹⁰Srの地中での移動速度は降水浸透速度の各々1/2000、1/2500、1/600以下であった。また²³⁹⁺²⁴⁰Pu、¹³⁷Cs、⁹⁰Srの分配係数は、各々=1000、1200、300(ml/g)であった。これらの分配係数を、バッチ法によって室内で測定された分配係数と比較した。²³⁹⁺²⁴⁰Puの場合は、フォールアウト²³⁹⁺²⁴⁰Puが(V+VI)価の酸化状態にあることから、バッチ実験に用いた(IV)価²³⁹Puの分配係数よりも1桁小さな値となった。このことは安全評価においてPuの分配係数としては、フォールアウトPuを活用して求めた分配係数を用いることは、安全側の評価結果を与えることになる。一方、¹³⁷Cs、⁹⁰Srの分配係数はフォールアウトを活用した場合の方が、バッチ法によって測定した場合よりも、いずれも2～3倍大きな値を与えている。このことは、バッチ実験の吸着平衡時間の長さの違いに原因があるものと思われる。従って¹³⁷Cs、⁹⁰Srの分配係数としては、短時間のバッチ試験において測定された分配係数を安全評価の際に採用することは、評価結果が安全側の結果を与えることを意味している。以上、世界中に広く分布しているフォールアウト核種の活用を図ることによって新に放射性物質を用いたトレーサー試験を行なわなくともフィールド条件下で通気層での核種地中移動の情報を得ることが可能となった。

第3章では、放射性核種の地中移動現象を把握する際に考慮しなければならない環境条件について室内実験およびフィールド調査を基に検討した。⁶⁰Coの土壌等への吸着性に影響を及ぼす環境因子としては、溶液の塩分濃度と系の酸化還元条件であることが分った。特に⁶⁰Co、海水中で還元(嫌気)条件下では著しく大きな移動能を持つことから、⁶⁰Coを主要汚染核種とする低レベル放射性廃棄物の処分は、海岸付近での地中処分は好ましくない

ことを指摘した。 ^{239}Pu の吸着移動実験を行うことによって、 ^{239}Pu の土壌等への吸着に大きく影響を及ぼす因子としては、 ^{239}Pu の酸化状態と共に地下水に含まれる懸濁物質であることを明らかにした。また、移動性の高い ^{239}Pu がカラムを用いた地中移動中に若干観測され、それら移動性に富む ^{239}Pu の分配係数は、元来の ^{239}Pu が持つ分配係数の1/100程度と小さなものであった。さらに貯水池底質内でのフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の分布を調査することにより環境条件下でも移動性の高いプルトニウムが存在することを明らかにした。移動性の高い $^{239+240}\text{Pu}$ の割合は、底質中に含まれる全 $^{239+240}\text{Pu}$ の約10%程度であった。地中での放射性核種の移動について検討する場合に注意を払う必要のある環境因子としては、酸化還元条件、溶液中に含まれる塩の種類とその濃度と溶存物質の種類と量であると言える。

第4章では、陸地処分の安全評価の考え方およびその評価のための手法とその評価モデルについて検討し、ケース・スタディを実施した。その結果、事前評価のように概略評価の場合には、本評価モデルの活用はきわめて有効であることが分った。またケース・スタディの結果、その主な被曝経路は、地下水経路となることが明らかとなった。さらに、低レベル廃棄物に含まれる代表的放射性核種である ^{60}Co 、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr を考えると（その存在量が ^{60}Co の1/1000であったとしても）安全評価上の決定核種は ^{90}Sr となることが明らかとなった。その理由は、 ^{90}Sr は ^{137}Cs 、 ^{60}Co に比べ地中での移動性が高いことと人体へ与える放射線学的影響が著しく大きいためである。さらに、原爆フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ が集中降下蓄積している長崎市西山地区で、蓄積しているプルトニウムによって一般公衆の受ける影響について本評価手法を用いて検討した。その結果、フォールアウトプルトニウムによる被曝線量は、最大でも自然放射線からの影響に比べても無視し得る程度であった。

5.2 本研究の問題点と将来の研究課題

本研究は、放射性廃棄物を陸地処分した際に放射線による人体への影響の程度を合理的に算定評価する手法の提示を主な目的とした。その際、特に注意を払ったことは、処分された廃棄物から漏洩した放射性核種が第1に遭遇する環境媒体である浅層地中での核種移動現象の把握を正確に行ない評価モデルの精度向上を計ることであった。このことは、研究の対象の中心を浅層地中（通気層）に限定したことになり、それ以外での環境媒体内

の核種移行現象の取扱いは、既存の研究を流用せざるを得なかったことになる。

このことによって、環境媒体の組合せによっては最終の評価結果の精粗の度合が、各分野での研究の進捗程度によって大きく左右されることとなった。客観的評価を行う上では、このことは好ましいことではないと考えられる。このような観点から、本研究を振り返って眺めた場合に、今後解決を計ってゆくべき問題点や将来の研究課題が多くあることに気付く。以下にそれらを整理してこの分野での研究が大きく推進することを願う次第である。

- (1) 安全評価の際に処分された固体廃棄物からの漏出量の評価は最も重要であるが、最も遅れた分野である。従来固化体からの漏出率等は研究されてきているが必ずしも現実に見合った研究とは言難い、例えば固化体とドラム缶等オーバーパック材が共存する場合の研究は進展していない。また固化体からの核種漏出の研究も、地下水等へのどぶ漬の状態で見られたものであり地中へ埋設された条件とは異なるものである。コンクリートピット等施設が存在する場合に、雨水や地下水の浸入浸出に関する研究は最も遅れている。これら人工バリアーの性能評価と耐久性の研究は、早急になされるべき課題である。
- (2) 放射性廃棄物から環境中へ漏洩してきた放射性核種の化学形態を明らかにする必要がある。今迄に実施されてきた研究では、そのほとんどが廃棄物から漏洩してきた核種の化学形態を明確にしないままに実施されてきた。核種の化学形態の違いは、地中移行あるいは生物濃縮の過程においても結果に大きく影響を与える。従って今後、廃棄物から漏洩した際の化学形態と環境中の核種の化学形態を変化させずに迅速に分別する手法の開発が必要である。
- (3) 本研究の中でも取上げた地中での移動性の高い化学形態を有する核種の生物体への取込み速度と濃縮割合について実験的に検討する必要がある。放射性核種の地中移動を観察すると多くの場合核種移動のブルームの中心と先端部では核種の化学形態に違いがある場合が多い。先端部で仮に核種濃度が希薄であったとしても生物濃度の割合が大きければ、線量評価に与える影響は大きなものとなる。
- (4) 安全評価モデルには、多くのパラメータを含んでおり、各々のパラメータには誤差が含まれている。全体として評価した結果に対する信頼性がどの程度であるのか検討する必要がある。そのためには、移行経路に沿った環境媒体で核種の物質保存が維持されるように評価モデルの構成を計る必要がある。

5.3 謝辞

筆者が、放射性廃棄物の陸地処分に係る研究に着手する切っ掛けを得たのは、京都大学工学部衛生工学科、放射線衛生工学研究室の井上頼輝教授の下で卒業特別研究と修士課程修了論文において“通気層”の研究を行った時に始まる。以来10年の長きにわたって温かく研究を見守り、御指導と御助言とを戴いた井上頼輝教授に心から感謝いたします。

本論文をとりまとめるに当り、京都大学原子炉実験所筒井天尊教授ならびに京都大学工学部衛生工学科寺島泰教授には、大変貴重な御意見を賜りましたことに心から深謝いたします。また本研究を進めるに当って、有益な御助言を戴きました衛生工学科放射線衛生工学研究室の森澤眞輔助教授に深く感謝いたします。

第2章は、長崎におけるフィールド研究が中心であり、土壌コアや底質コアの採取等に多大な御協力を戴いた長崎大学水産学部水産化学科の宮原昭二郎教授と、長崎大学名誉教授岡島俊三先生に深く感謝いたします。

第3章の3.2と3.4節の研究を進めるに当っては、カナダ国立科学研究所（NRC）の工藤章博士に大変お世話になりました。また、3.3節の研究では、日本原子力研究所 環境安全研究部低レベル廃棄物処理処分研究室の和達嘉樹室長と松鶴秀夫副主任研究員にお世話になりました。

第2章から第4章までの研究は、(財)電力中央研究所の研究の一環として実施してきたものであり、安芸周一 我孫子研究所所長、和田明 副所長、白砂孝夫 水理部長、駒田広也 地下水理研究室長をはじめ多くの方々の御協力を得たことを最後に付記し 深く感謝いたします。

